

UNIVERSIDAD DE LA REPÚBLICA
FACULTAD DE QUÍMICA
PEDECIBA QUÍMICA

“Irradiación y contaminación radiactiva natural en el ecosistema costero del Departamento de Rocha, Uruguay, y su incidencia en aspectos sociales, laborales y productivos”

MSc. Ana Lía Noguera

Directora de Tesis: Dra. Laura Fornaro

Grupo de Desarrollo de Materiales y Estudios Ambientales-

Facultad de Química

Centro Universitario Regional del Este (CURE)

2018

A mi abuela

ÍNDICE

1. Introducción.....	9
1.I. Las arenas negras en el mundo.....	9
1.II. Las arenas negras en el Uruguay	11
1.III. Departamento de Rocha – zona de estudio.....	13
1.IV. Presencia de radionucleidos naturales en el ambiente.....	19
1.V. Cuantificación de los radionucleidos naturales en el ambiente	31
1.IV. Antecedentes de su incidencia en aspectos sociales, laborales y productivos en el mundo y en Uruguay	39
2. Objetivos.....	42
3. Parte Experimental.....	43
3.I.1. Instalación de la infraestructura necesaria para los trabajos	43
3.I.2. Consideraciones de seguridad radiológica	44
3.I.3. Optimización de las condiciones de trabajo	44
3.II. Delimitación del área de estudio.....	45
3.II.1. Muestreo de arena en la franja costera del sitio RAMSAR 290 del Departamento de Rocha	45
3.II.2. Preparación de muestras y cuantificación de ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K por espectrometría gamma	48
3.II.3. Evaluación de zonas potenciales de riesgo radiológico por la presencia de ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K en arena de Playa	52
3.III. Evaluación del área Barra de Valizas – Aguas Dulces.....	54
3.III.1. Muestreo de arena, suelo, agua superficial y subterránea del área Barra de Valizas – Aguas Dulces.....	55
3.III.2. Preparación y caracterizaciones fisicoquímicas de las muestras del área Barra de Valizas – Aguas Dulces.....	63
3.III.2.a. Preparación y caracterizaciones fisicoquímicas de las muestras de arena y suelo.....	63
3.III.2.b. Acondicionamiento y caracterizaciones fisicoquímicas de las muestras de agua.....	66
3.III.3. Evaluación de radionucleidos presentes en el compartimento arena – suelo del área de estudio Barra de Valizas – Aguas Dulces	66
3.III.3.a. Cuantificación de los radionucleidos ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K por espectrometría gamma	66
3.III.3.b. Validación de la geometría cilíndrica de 100 mL para cuantificación de los radionucleidos ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K	66
3.III.3.c. Cuantificación de los radionucleidos ^{238}U y ^{210}Pb	67
3.III.3.d. Cuantificación del radionucleido antropogénico ^{137}Cs por espectrometría gamma	69
3.III.4. Evaluación de radionucleidos presentes en el compartimento agua.....	69

3.III.4.a. Preparación de muestras y determinación de la actividad alfa y beta total	71
3.III.4.b. Preparación de muestras y cuantificación de los radionucleidos ^{226}Ra , ^{228}Ra y ^{210}Pb	71
3.IV. Distribución de los radionucleidos en el Área Barra de Valizas-Aguas Dulces: transferencia de radionucleidos entre compartimentos: suelo – vegetación.....	77
3.V. Evaluación del riesgo radiológico de la población permanente y turistas (aspectos sociales) del área Barra de Valizas – Aguas Dulces.....	79
3.V.1. Riesgo radiológico de irradiación externa debido a la presencia de los radionucleidos naturales en suelo y arena	79
3.V.2. Riesgo radiológico de irradiación interna (contaminación) debido a la presencia de radionucleidos naturales en el agua de consumo	79
3.V.3. Evaluación de riesgo radiológico debido a los materiales de construcción (aspectos sociales y laborales).....	80
4. Resultados y Discusión	81
4.I.1. Instalación de la infraestructura necesaria para los trabajos	81
4.I.2. Consideraciones sobre seguridad radiológica	82
4.I.3. Optimización de las condiciones de trabajo	82
4.II. Delimitación del área de estudio.....	86
4.II.1. Cuantificación de la concentración de actividad de los radionucleidos ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K por espectrometría gamma	86
4.II.2. Evaluación de zonas potenciales de riesgo radiológico por la presencia de ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K	94
4.III. Evaluación del Área Barra de Valizas – Aguas Dulces.....	99
4.III.1. Caracterización fisicoquímica de las muestras.....	99
4.III.2. Evaluación de los radionucleidos presentes en el compartimento arena – suelo.....	107
4.III.2.a. Evaluación de la concentración de actividad de los radionucleidos ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K	107
4.III.2.b. Validación de la geometría cilíndrica de 100 mL para cuantificación de los radionucleidos ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K	116
4.III.2.c. Evaluación de la concentración de actividad de los radionucleidos naturales ^{238}U y ^{210}Pb con geometría de 100 mL.....	118
4.III.2.d. Evaluación de la concentración de actividad de los radionucleidos ^{137}Cs	125
4.III.3. Evaluación de radionucleidos presentes en el compartimento agua.....	128
4.III.3.a. Evaluación de la actividad alfa y beta total	128
4.III.3.b. Evaluación de la concentración de actividad de los radionucleidos ^{226}Ra , ^{228}Ra y ^{210}Pb	131
4.IV. Distribución de los radionucleidos en el área Barra de Valizas – Aguas Dulces.....	134
4.V. Evaluación de riesgo radiológico de la población permanente y turistas (aspectos sociales)	139
4.V.1. Riesgo radiológico de irradiación externa debido a la presencia de los radionucleidos naturales en suelo y/o arena	139
4.V.2. Riesgo radiológico de irradiación interna (contaminación) debido a la presencia de los radionucleidos naturales en el agua de consumo	140

4.V.3. Evaluación del riesgo radiológico debido a los materiales de construcción (aspectos sociales y laborales).....	141
5. Conclusiones.....	145
6. Trabajo futuro.....	147
7. Referencias bibliográficas	149
Agradecimientos	169
Anexo 1	171

1. INTRODUCCIÓN

1.1. Las arenas negras en el mundo

El término “arenas negras” hace referencia a los minerales pesados que pueden ser encontrados en depósitos denominados Placer; estas arenas pueden ser generadas y concentradas por la acción de agentes naturales como corrientes de agua, y acción de las olas y el viento a lo largo de la playa, así como también por procesos extractivos. Sin importar si son de origen natural o de minería las arenas negras son producto de descomposición y ruptura de rocas, seguido por concentración por gravedad. En estos procesos en la mayoría de los casos la composición de la arena hace que tome color negro o marrón oscuro, de ahí la denominación. Debido a que se forman por desgaste de rocas los minerales componentes de las arenas negras son en general resistentes química y mecánicamente. Es entonces un yacimiento formado por la concentración de minerales en la arena de ríos, arroyos o playas como consecuencia de su elevada densidad (mayor que el cuarzo), minerales que deben ser al mismo tiempo resistentes a la abrasión. Los placeres se clasifican en depósitos residuales y depósitos transportados. En los primeros los minerales han sido más o menos liberados por desgaste y el depósito posee más o menos la misma composición que la roca original, de esta manera los minerales no han sido concentrados, mientras que en los segundos los minerales generados por desgaste se han desplazado de la roca original y se han re-depositado (generalmente por acción del agua corriente). En estos procesos de transporte y re-deposición los minerales inestables se solubilizan, los minerales más livianos viajan más que los más pesados generándose depósitos concentrados. Estos últimos son los más estudiados, debido a su importancia comercial. Los minerales que se pueden encontrar en un depósito de arena negra dependen del tipo de roca de la cual el depósito proviene; las arenas negras por lo tanto en general son una mezcla de varios minerales pero pueden consistir enteramente de uno o dos minerales. En la Tabla 1 se muestran los principales minerales presentes en los depósitos de arenas negras; es imposible detallarlos todos porque cualquier mineral resistente al desgaste podría estar presente en los depósitos (Margeanu et al. 2014; Prater 1957).

Mineral	Composición Química
Magnetita	Fe ₂ O ₄
Hematita	Fe ₂ O ₃
Ilmenita	FeO.TiO ₂
Rutilo	TiO ₂
Monacita	(Ce, La, Nd, Th)PO ₄
Zircón	ZrSiO ₄

Tabla 1: Minerales pesados presentes en la mayoría de los depósitos de arenas negras.

Los minerales cuya densidad específica es menor a 6 g.cm^{-3} no pueden ser concentrados por procesos de transporte fluvial debido a que la diferencia de densidad con el sedimento base no es lo suficientemente grande para poseer modos de transporte diferencial en la mayoría de los regímenes hidráulicos turbulentos (de composición base cuarzo o feldespato cuya densidad específica es 2.7 g.cm^{-3}). Este es el caso de los minerales detallados en la Tabla 1, pero que sí pueden ser concentrados por los sistemas de arenas costeras (Spencer Cronan 1999).

Los depósitos de costa se acumulan en las playas, las estructuras son laminares o tubulares sub-horizontales, la acumulación de volúmenes significativos requiere de múltiples transgresiones o acción simultánea del viento. Los depósitos de mar adentro se producen por acciones de las olas durante las tormentas, removiendo materiales de 80 a 120 m de profundidad (Ferrando et al. 2003).

Existen reportes de depósitos de arenas negras en las costas de Australia (Roy 1999, Reid et al. 2013), Nueva Zelanda (Bryan et al. 2007), Malasia (Sanusi et al. 2017), Grecia (Papadopoulos et al. 2015), India (Angusamy y Rajamanickam 2006, Bernstein et al. 2008), Egipto (Soliman et al. 2011, Abdel-Aal et al.2012), Namibia (Blanco et al 2014); Tanzania (Alvin et al. 2016), Sudáfrica (Philander y Rozendall 2015), Estados Unidos (Pardee 1934, Cook 1969, Peterson et al. 1986, Carpenter y Carpenter 1991, Pirkel et al. 2009, McLemore et al 2016), y Brasil (Dillenburg et al. 2004), entre otros.

1.II. Las arenas negras en el Uruguay

La existencia de depósitos de arenas negras en el Uruguay ha sido reportada en la zona costera del País, extendiéndose desde Montevideo a Chuy (Píriz Mc. Coll 1953 a, b), con diferentes porcentajes y composición de minerales pesados. Píriz Mac Coll ha reportado que las zonas de mayor concentración de minerales pesados se encuentran en las Playas de Atlántida – zona El Águila - (alcanzando 58.5 %), La Floresta (alcanzando 52.4 %), Costa Azul (de 2 a 10 %) y San Luis (de 2 a 10 %) en el departamento de Canelones, Solís (alcanzando 16.7 %), Bella Vista (alcanzando 18.4 %) y Playa Verde (de 2 a 10 %) en el departamento de Maldonado, y finalmente La Pedrera (de 2 a 10 %), Aguas Dulces (de 2 a 10 %) y La Coronilla (de 2 a 10 %) en el departamento de Rocha. En la Figura 1 se aprecian fotografías de arenas negras de las costas uruguayas.



Figura 1: Fotografías de depósitos de arenas negras de las costas uruguayas

De los yacimientos antes mencionados el más estudiado es el yacimiento Aguas Dulces (sin ser el de mayor concentración de minerales pesados); éste ha sido estudiado primeramente por ANCAP en el Período 1955-1965 (ANCAP 1972, Mujica y Marotta 1968) y posteriormente por la Dirección Nacional de Minería y Geología (DINAMIGE) del Ministerio de Industria, Energía y Minería (MIEM) y la Facultad de Agronomía,

UdelaR en el 2002 (Soares de Lima et al 2002, Ferrando et al. 2003). Todos los estudios de este yacimiento fueron realizados en el padrón 1645 del Ministerio de Ganadería Agricultura y Pesca (MGAP) (Ferrando et al. 2003), transferido por Ley 19060 al Instituto Nacional de Colonización en 2013 (Parlamento del Uruguay 2017). Según los primeros el yacimiento se encuentra ubicado en Aguas Dulces, Rocha, inmediato y paralelo a la costa por 12 km, con una profundidad útil que oscila entre 2 y 12 metros y un ancho variable entre 1 y 2 km. Los minerales pesados aparecen en el mismo en hiladas milimétricas entre capas de granos de cuarzo y feldespato (Soares de Lima et al 2002).

El yacimiento de arenas negras de Aguas Dulces posee una concentración de minerales pesados del 2,5 % en peso, alcanzando 3 millones de toneladas en un volumen de un millón de metros cúbicos. Los minerales pesados presentes están constituidos por 50 % Ilmenita, 20 % Magnetita, 5 % Circón, 1 % Rutilo, 1 % Monacita, 10 % Epidoto, 9 % Granate, y 4 % Anfíboles (Bossi y Navarro 2000). La composición química de las fracciones pesadas con valor económico -según lo reportado por DINAMIGE, cuya composición difiere levemente de los anteriores- se detalla en la Tabla 2.

Mineral	% Mineral pesado	Composición	
Ilmenita	60.3	TiO ₂	50.30 %
		FeO	29.10 %
		Fe ₂ O ₃	15.20 %
		MnO	1.60 %
		Cr ₂ O ₃	0.30 %
		V ₂ O ₅	0.20 %
Rutilo	1.17	TiO ₂	94 %
Circón	4.76	ZrO ₂ +Hf	64.80 %
Monacita	0.65	Insolubles	8 %
		Óxidos totales	61.10 %
		ThO ₂	4.70 %
		U ₃ O ₈	0.18 %

Tabla 2: Composición química de la fracción pesada con valor económico reportada por DINAMIGE (Soares de Lima, et al. 2002)

Cabe señalar aquí que todos los estudios realizados hasta el momento refieren a la posibilidad de prospección de los mismos. Según registro del Ministerio de Industria, Energía y Minería existen actualmente en la zona un permiso de exploración otorgado y un permiso de prospección en trámite (DINAMIGE 2017).

Los estudios indican que la composición promedio de minerales pesados es del 2.8 %, encontrándose zonas de mayor concentración alcanzando hasta el 8 %, con tendencia a encontrar los niveles más ricos en las fracciones superiores del depósito. También se observa tendencia a un aumento de concentración hacia la zona continental (L. Ferrando et al. 2003).

El origen del yacimiento se considera que está determinado por los depósitos litorales del Océano Atlántico en un momento indeterminado entre 130000 y 5000 años atrás. Los distintos pulsos de ingreso y regresión del nivel del mar provocaron la concentración de los minerales densos en los depósitos costeros. A su vez la acción del viento sobre la superficie de los mismos provocó la eliminación de parte de la fracción liviana aumentando la concentración de los minerales pesados (Ferrando et al. 2003). Aunque la edad del mismo difiere según la fuente consultada, para la DINAMIGE el depósito se puede caracterizar como un placer costero, de edad holocénica (Soares de Lima, et al. 2002).

1.III. Departamento de Rocha – zona de estudio

El Departamento de Rocha se ubica en la costa este del Uruguay, con costas al Océano Atlántico, entre los 33° 09' y 34° 48' de latitud sur y los 53° 21' y los 54° 28' de longitud oeste, ocupando un área de 10551 km².

El clima del departamento es subtropical húmedo con variaciones estacionales de temperatura y precipitaciones. La temperatura media anual es de 16.6°C, con una máxima media anual de 22°C y una mínima media anual de 13°C. La precipitación media anual es de 1227 mm con máximas en marzo y mínimas en diciembre (Castaño et al. 2011).

La población del Departamento representa el 2.2 % de la población del País, con 68000 habitantes según el Censo de 2011, no presentando aumento entre censos -2004 al 2011-

(INE 2017). La mayor densidad de población se encuentra en los alrededores de su capital y en la franja costera.

Desde una óptica ambiental, el departamento de Rocha presenta una riquísima biodiversidad con gran variedad de hábitats y ecosistemas acuíferos, una enorme riqueza en flora, más de 300 especies de pájaros y mamíferos, aparte de la riqueza de sus aguas costeras (PROBIDES 2017). Se encuentran en él diversas áreas pertenecientes al Sistema Nacional de Áreas Protegidas (SNAP). Ellas son Parque Nacional Cabo Polonio, Cerro Verde e Islas de la Coronilla, Parque Nacional de San Miguel, Paisaje protegido Laguna de Rocha, y Área de manejo de hábitat y/o especies Laguna Garzón (Maldonado – Rocha).

El área protegida Parque Nacional Cabo Polonio es un ecosistema costero – marino con diversidad de ambientes naturales, que incluye playas arenosas, dunas, puntas rocosas, bosque nativo costero, humedales, ambientes oceánicos e islas. El componente más destacado según SNAP es el sistema de dunas, las mismas superan los 20 metros de altura, siendo una de las pocas áreas de dunas móviles. En el parque habitan varias especies amenazadas o de distribución restringida *Melanophryniscus montevidensis* (sapito de Darwin), *Physalaemus biligonigerus* (rana de cuatro ojos), *Acanthochelys spixii* (tortuga de canaleta) y especies migratorias como *Eubalaena australis* (ballena franca austral) y *Chelonia mydas* (tortuga verde), entre otras. En sus islas se localiza casi la mitad de la población de lobo marino y león marino del Uruguay (MVOTMA 2017).

El área protegida Cerro Verde e Islas de la Coronilla es un ecosistema costero-marino con elevado grado de naturalidad y una importante variedad de ambientes que sustentan una gran diversidad de especies. La porción terrestre incluye lomadas y planicies asociadas a dunas costeras, cañadas, puntas rocosas, playas arenosas y distintos tipos de formaciones vegetales. La porción marina incluye un complejo de islas oceánicas. Se destaca como hábitat de especies prioritarias para la conservación, como *Eubalaena australis* (ballena franca austral), *Pontoporia blainvillei* (delfín franciscana), *Tursiops truncatus* (tonina), colonias de *Otaria flavescens* y *Arctocephalus australis* (lobos marinos), entre otras. Cerro Verde es una de las principales áreas de alimentación y desarrollo para individuos juveniles de *Chelonia mydas* (Tortuga Verde) (una especie considerada en peligro a nivel mundial), provenientes de 10 distintas playas de

anidación del Océano Atlántico. Numerosas poblaciones de aves migratorias utilizan estas zonas costero-marinas, entre ellas chorlos y playeros. El área alberga poblaciones de varias especies globalmente amenazadas como la *Xolmis dominicanus* (viudita blanca grande), y diversas especies de capuchinos. Por otra parte, la isla Verde es el único sitio de reproducción conocido en Uruguay de una colonia mixta de gaviotines (de pico amarillo, real y sudamericano) (MVOTMA 2017).

El área protegida Parque Nacional de San Miguel se encuentra en una zona donde predominan las llanuras bajas internas y lagunares alternando con sitios de sierras rocosas. Gran parte del área del Parque Nacional se encuentra cubierta por monte indígena y por una vegetación de pajonales acompañada de un tapiz de gramíneas. Se puede apreciar en la zona una gran variedad de especies como *Myrrhinium loranthoides* (palo de hierro), *Fagara hiemalis* y *Fagara rhoifolia* (tembetarí), *Blepharocalyx salicifolius* (arrayán), *Scutia buxifolia* (coronilla) y *Citharexylum montevidense* (tarumán) (MVOTMA 2017).

El Paisaje protegido Laguna de Rocha se encuentra en la costa atlántica del Departamento e incluye el cuerpo de agua, lomadas, llanuras, la franja costera y parte de la plataforma oceánica. La laguna se comunica periódicamente con el océano Atlántico a través de un sistema de apertura y cierre de la barra arenosa, debido a la acumulación de agua y a la acción simultánea del viento y el oleaje del mar. Más de 220 especies de aves, tanto migratorias como residentes, habitan en el área. Se destacan: *Rynchops nigra* (rayadores), *Larus maculipennis* (gaviotas de capucho café), *Ardea cocoi* y *Egretta sp* (garzas), *Tryngites subruficollis* (chorlito canela), y aves rapaces como *Rostrhamus sociabili* (caracolero). Es visitada por aves de lugares tan remotos como Alaska o las Islas Malvinas. Es uno de los pocos sitios del país donde habitan *Phoenicopterus chilensis* (flamenco) y *Coscoroba coscoroba* (ganso blanco), una especie amenazada. La población de *Cygnus melancoryphus* (cisne de cuello negro) es una de las mayores del mundo (MVOTMA 2017, Roca y Aldabe 2012).

El área de manejo de hábitat y/o especies Laguna Garzón (Maldonado – Rocha) se ubica en el límite entre los departamentos de Maldonado y Rocha, e integra un extenso sistema de lagunas de la costa atlántica del Cono Sur. Gracias a su conectividad con el Océano Atlántico, el área presenta un mosaico de ambientes singulares de elevado valor

paisajístico y patrimonial en un espacio territorial pequeño y una gran diversidad de fauna y flora asociada a esos ambientes (MVOTMA 2017).

En Rocha se encuentran además dos de los tres sitios RAMSAR que existen actualmente en Uruguay, Laguna de Rocha –sitio RAMSAR 2236- y Bañados del Este y Franja costera – sitio RAMSAR 290.

El sitio RAMSAR 2236 (34°38’S 54°17’O) ocupa un área de 10933 ha y está íntegramente en el departamento de Rocha. Forma parte del sistema lacustre de la costa atlántica que se caracteriza por comunicarse con el Océano Atlántico a través de un sistema dinámico de apertura y cierre de barras arenosas. Entre los tipos de humedales presentes en el sitio se destacan sus playas, lagunas costeras, ríos y otros humedales estacionales. Este sitio Ramsar se encuentra totalmente comprendido dentro del Área Protegida Laguna de Rocha En la Figura 3 se muestra el sitio RAMSAR Laguna de Rocha.

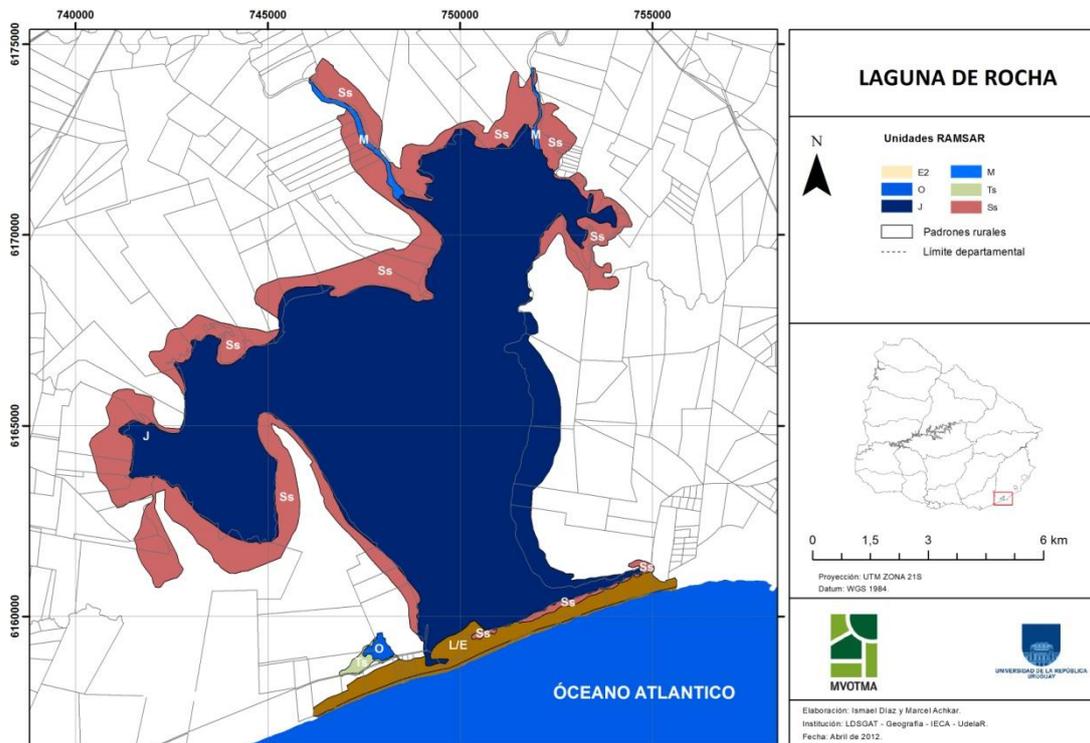


Figura 3: Sitio RAMSAR 2236 Laguna de Rocha (RAMSAR 2017)

El sitio RAMSAR 290 (33° 48' S – 53° 50' O) cuya área es de 407408 ha está localizado en la región sureste del Uruguay sobre su costa atlántica y en algunas áreas límites con la frontera con Brasil (RAMSAR 2017). En la Figura 4 se puede apreciar el área del mencionado sitio.

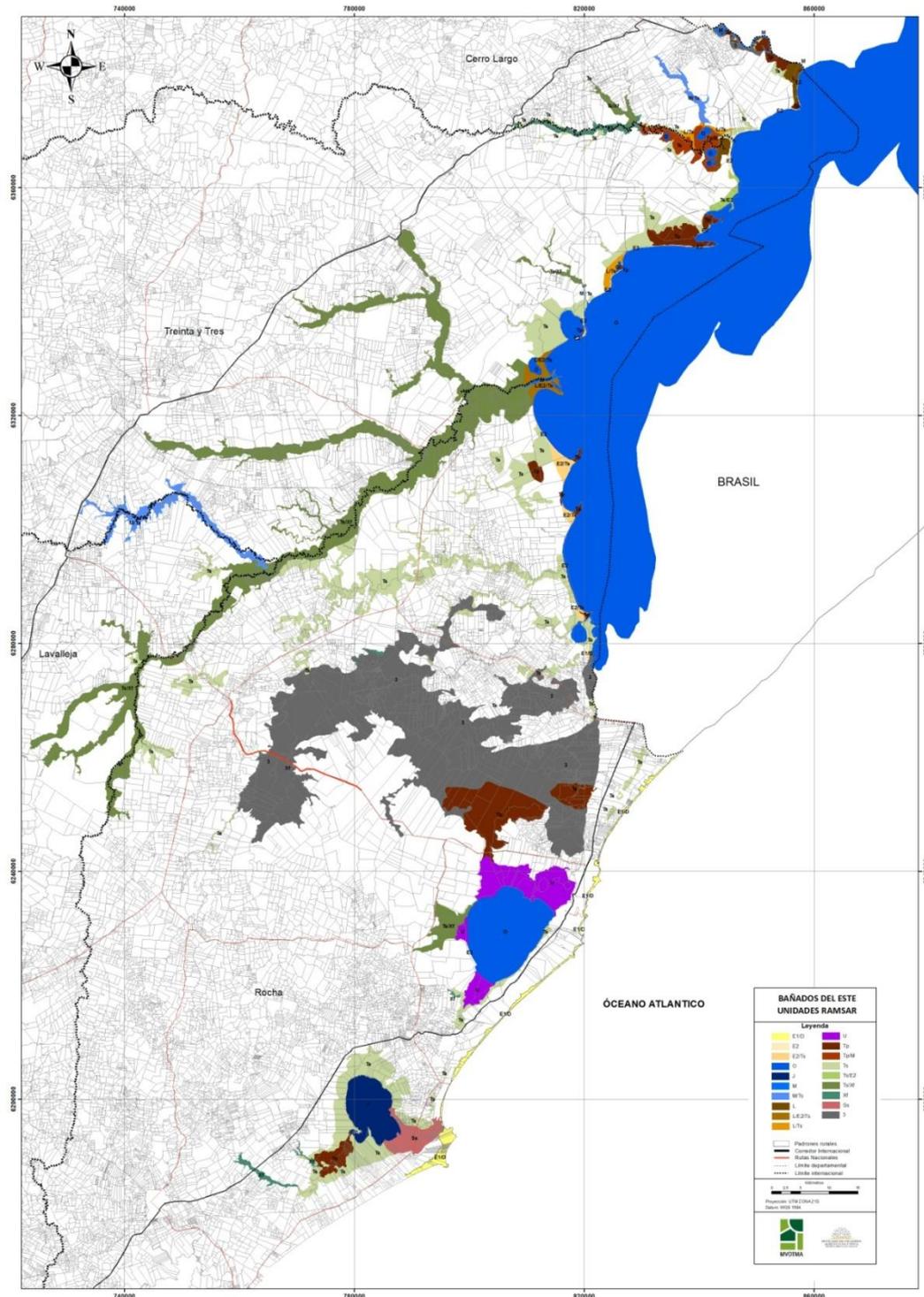


Figura 4: Sitio RAMSAR 290 Bañados del Este y Franja costera (RAMSAR 2017)

El sitio está constituido por un complejo de humedales vinculados a tres importantes lagunas costeras de Uruguay: la Laguna Merín, la Laguna Negra y la Laguna de Castillos. Gracias a la conectividad del sitio con el océano Atlántico y con los ríos que desembocan en él, se pueden encontrar diversos tipos de humedales que incluyen lagunas salobres, lagos de agua dulce, humedales boscosos, ríos y pantanos, entre otros. Asimismo, una parte del sitio Ramsar está compuesta por humedales artificiales como lo son las zonas arroceras.

En la franja costera, se pueden encontrar acumulaciones de arena como ser dunas movedizas, dunas fijadas por vegetación y playas sujetas a la dinámica de las olas y el viento, así como afloramientos rocosos. En estos diferentes paisajes costeros se encuentran balnearios como Punta del Diablo y Cabo Polonio (afloramientos rocosos) o Barra de Valizas y Aguas Dulces (playas arenosas).

La zona sustenta un gran número de especies de fauna y flora, muchas de las cuales se encuentran en estado de conservación vulnerable o son endémicas. Le sirve como hábitat, provee fuentes de alimento, zonas de reproducción y zonas de descanso para un total de 60 especies de peces, 33 de anfibios, 44 de reptiles, 70 de mamíferos y 247 de aves acuáticas residentes y migratorias (RAMSAR 2017). Como ejemplo se pueden mencionar *Ozotoceros bezoartica* (venado de campo), *Myocastor coypus* (nutria), *Hydrochoerus hydrochaeris* (carpincho), *Gubernatrix cristata* (cardenal amarillo), y *Calidris canutus* (chorlo rojizo). Además el área posee una gran diversidad de flora como ser *Erythrina cristagalli* (ceibos), *Butia capitata* (palmera de butiá) y *Phitolacca dioica* (ombú) (Altamirano (2001), Dugan y Diéguez (1988)).

A lo largo de toda la costa del Departamento y por supuesto en las áreas protegidas y sitios RAMSAR antes mencionados se encuentran poblaciones que hacen uso de sus distintos recursos. Dentro de las actividades realizadas por los pobladores se pueden destacar la pesca, la recolección de camarones, la ganadería y la agricultura – principalmente arroz (Altamirano (2001), Dugan y Diéguez (1988)). Este sitio RAMSAR incluye las Áreas protegidas Parque Nacional de San Miguel, Parque Nacional Cabo Polonio y Cerro Verde e Islas de La Coronilla (RAMSAR 2017).

Los pobladores de la zona, principalmente los de las zonas balnearias, además de cultivar las tierras, las utilizan – en forma de barro – o utilizan a la arena misma como

material de construcción de sus hogares. El uso de la arena de playa para construcción no está permitido en Uruguay pero de todas maneras es una práctica común al igual que lo es en otras zonas balnearias de América Latina (Aquino 2010). Para la zona de Aguas Dulces y Barra de Valizas la arena forma parte de su lugar de vida; muchos hogares están literalmente contruidos sobre los médanos y por lo tanto sus habitantes – principalmente los niños – pasan su vida sobre ella, como queda registrado en libros que relatan las costumbres de la zona (Rocha 2013).

La zona cuenta también con gran actividad turística, principalmente en los balnearios, esto se ve reflejado en el aumento de población durante los meses de enero y febrero. La población permanente de los balnearios es de 8400 habitantes, llegando a superar los 120000 visitantes de todo el mundo durante el verano, según información del Ministerio de Turismo.

1.IV. Presencia de los radionucleidos naturales en el ambiente

El ser Humano está expuesto a radiaciones en diversos ámbitos de su vida. Las fuentes de exposición a las radiaciones pueden ser naturales o artificiales, siendo las primeras responsables de 80 % de la dosis efectiva promedio mundial. La dosis efectiva debida a las fuentes naturales equivale en promedio a 2.4 mSv anuales, encontrándose en un rango de 1 a 13 mSv según reporte del “United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation” (UNSCEAR) (UNSCEAR 2008), y con grupos de poblaciones cuyos valores superan los 13 mSv. Según el mismo informe el mayor aporte a la dosis efectiva debido a fuentes naturales se debe a la inhalación del gas radón, aportando en promedio 1.26 mSv anuales – lo cual representa el 52.5 % de las fuentes naturales – encontrándose lugares que superan los 10 mSv por año, debido principalmente al tipo de construcción de las viviendas. En promedio la población mundial recibe 0.48 mSv anuales – representando el 20 % de la dosis efectiva debida a fuentes naturales - por exposición a la radiación terrestre, con un rango típico de 0.3 a 1 mSv anuales y reportándose lugares con dosis efectiva varias veces mayor. Estas áreas donde la exposición a fuentes naturales exceden los valores que se puede considerar radiación de fondo “normal” se denominan áreas de radiación natural incrementada (ENRA, del inglés “enhanced natural radiation area”). Los organismos de referencia en el tema, como la UNSCEAR, no han definido valores de referencia específicos de concentración de actividad ni de tasa de dosis para categorizarlo; esta situación se da

debido a la imposibilidad de reducción de la exposición en zonas con elevada concentración de actividad de Uranio y Torio, o áreas con elevados niveles de exposición a la radiación cósmica, entre otros. Son ejemplos de ENRA Poços de Caldas y Guarapari en Brasil, Lazio, Orvieto y la región sur de la Toscana en Italia, la región central de la Bohemia en República Checa, en todos estos casos debido a que son áreas con alta concentración de actividad de Uranio y Torio. También se categorizan como ENRA Ganzu, Qinghai y Tíbet en China y Denver en Estados Unidos, en estos casos debido a que son áreas de elevada radiación cósmica. A pesar de la no existencia de límites específicos estas áreas son de particular relevancia en estudios epidemiológicos sobre los efectos de la exposición a bajas dosis de radiación (UNSCEAR 2008).

Las consideraciones sobre los efectos biológicos de las radiaciones exceden los objetivos de esta Tesis, y se pueden encontrar detalladamente descritas en variada bibliografía (ATSDR 1999, Grosch y Hopwood 1979, IAEA 1997, ICRP 2007, UNSCEAR 2016).

La dosis efectiva debida a radiación terrestre se debe principalmente a los radionucleidos denominados primordiales (debido a su largo período de semidesintegración ($t_{1/2}$)) como ser los de las series de ^{238}U y ^{232}Th , el ^{40}K – objetos de esta tesis- y otros radionucleidos naturales en menor proporción como ser el ^{87}Rb . También aportan a la dosis efectiva anual debido a fuentes naturales la ingesta de radionucleidos presentes en el agua o en los distintos alimentos, aportando en promedio 0.29 mSv anuales, alcanzando valores de 1 mSv según UNSCEAR, y la radiación cósmica, en promedio 0.39 mSv anuales alcanzando valores de 1 mSv en lugares de gran altitud. Esta clasificación de aporte a la dosis efectiva anual brindada por UNSCEAR está dada en función de la irradiación externa (fuentes terrestres y cósmicas) e interna (inhalación e ingesta), pero en la mayoría de los casos – con diferente tipo y grado de exposición – se debe a los radionucleidos primordiales o a los productos de su decaimiento.

Como se mencionó anteriormente se consideran radionucleidos primordiales aquellos radionucleidos naturales presentes en la corteza terrestre de largo período de semidesintegración y a los radionucleidos generados por el decaimiento de éstos. En la Figura 5 se presentan las series de decaimiento del ^{238}U ($t_{1/2}=4.47 \times 10^9$ años), ^{235}U ($t_{1/2}=7.04 \times 10^8$ años), y ^{232}Th ($t_{1/2}=1.41 \times 10^{10}$ años), que junto con el ^{40}K ($t_{1/2}=1.34 \times 10^9$

años) forman el mencionado grupo de radionucleidos primordiales (UNSCEAR 2008). Tanto los radionucleidos primordiales como sus productos de decaimiento están presentes en la corteza terrestre y por lo tanto pueden migrar e incorporarse a otros compartimentos – como ser agua, vegetales y animales – entre ellos el ser humano. La importancia de su presencia en el ambiente depende no sólo de su concentración de actividad sino también de su comportamiento químico, físico, radioquímico y fisiológico, razón por la cual se deben estudiar en cada compartimento, así como se debe estudiar también la transferencia entre los mismos.

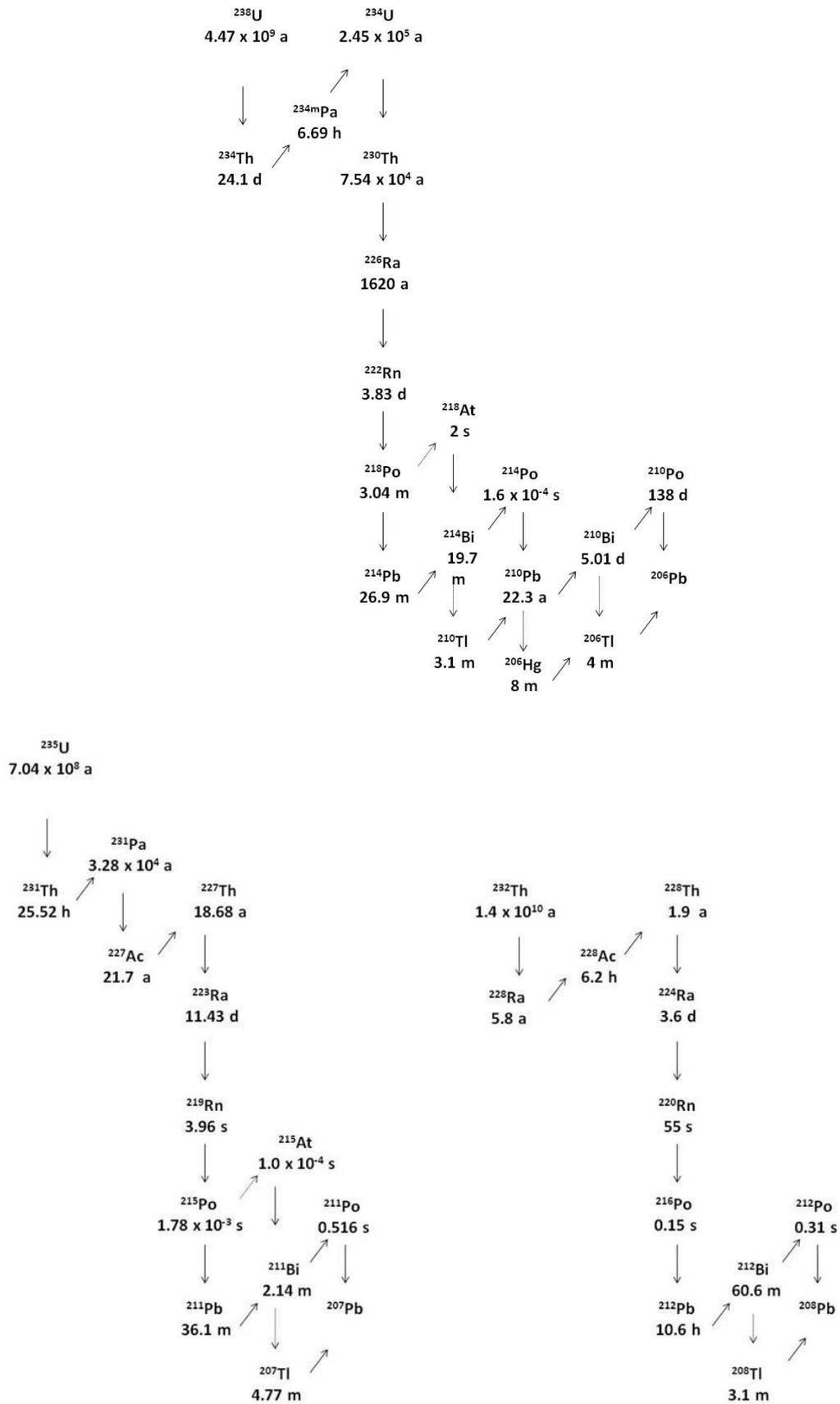
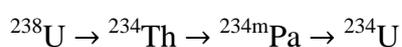


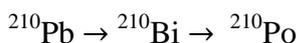
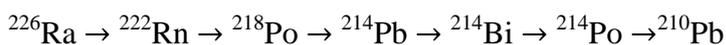
Figura 5: Series de decaimiento naturales de ^{238}U , ^{235}U y ^{232}Th

Debido a que en las distintas series radiactivas los radionucleidos poseen tiempos de semidesintegración muy diferentes, se pueden establecer equilibrios radiactivos. En el caso de las series del ^{238}U y ^{232}Th (objeto de este trabajo) los equilibrios que se pueden establecer son seculares, debido a que los tiempos de semidesintegración de los hijos son varios órdenes de magnitud menores que los de los padres. En general se puede considerar que se ha alcanzado el equilibrio secular cuando ha transcurrido un período de tiempo igual o mayor a 7 períodos de semidesintegración del hijo. En condiciones de equilibrio secular la actividad del padre es igual a la actividad del hijo y ambos decaen con el tiempo de semidesintegración aparente del padre (Bateman 1910; Loversand et al. 2006).

La serie del ^{235}U , si bien es una serie natural, no se considerará en este estudio pues es de menor importancia ya que la abundancia relativa del ^{235}U en el uranio natural es del 0.73 %, mientras que la del ^{238}U es del 99.27 %.

En la naturaleza, en sistemas cerrados y en condiciones tales que no hayan existido perturbaciones (ningún miembro de la serie haya sido sometido a procesos de separación química o física) se puede considerar que las distintas series radiactivas están en equilibrio secular. Para la serie del ^{232}Th , debido a que los tiempos de semidesintegración de los productos de decaimiento son varios órdenes de magnitud menor que el del ^{232}Th , normalmente se considera que el equilibrio se recupera rápidamente aún cuando haya perturbaciones, ya que existen únicamente dos radionucleidos con tiempos de semidesintegración del orden de años, ^{228}Ra y ^{228}Th . En cambio, la serie del ^{238}U se puede subdividir en sub-series, las cuales pueden estar en equilibrio secular (si no existieron perturbaciones) aún cuando no se haya establecido el equilibrio secular en toda la serie. Estos equilibrios seculares dentro de la serie se pueden definir en función de los tiempos de semidesintegración de los radionucleidos de la serie, es decir un padre de tiempo de semidesintegración largo en equilibrio secular con sus hijos de tiempos de semidesintegración cortos. El tiempo necesario para alcanzar el equilibrio secular depende del tiempo de semidesintegración de los radionucleidos hijos. Es así que en la serie del ^{238}U se pueden identificar las siguientes subseries:





Los equilibrios seculares se pueden romper por fenómenos físicos o químicos, entre ellos cabe señalar que el ^{222}Rn es un gas y por ende difunde fácilmente escapando así de los sistemas. Además, los distintos radionucleidos forman compuestos con diferente solubilidad, afinidad por materia orgánica, potenciales redox, etc. Las diferentes propiedades físicas y químicas de los compuestos formados por los radionucleidos generan disequilibrios.

El estudio de los equilibrios o disequilibrios entre los radionucleidos de tiempo de semidesintegración largo, brinda información importante sobre los distintos sistemas, es así que desde un punto de vista ambiental la cuantificación de radionucleidos como ^{238}U , ^{234}U , ^{230}Th , ^{226}Ra , ^{210}Pb y ^{210}Po para la serie del ^{238}U , y de ^{232}Th , ^{228}Ra y ^{228}Th para la serie del ^{232}Th , es de particular relevancia.

A continuación se detallan las características físicas y químicas más relevantes de los distintos elementos de la serie del ^{238}U y ^{232}Th de gran implicancia a efectos de estudios ambientales.

El Torio forma compuestos insolubles por lo que no es probable su movilización por el agua (Michel 1990), y no se ven afectados por procesos oxidativos (Al-Hilal y Aissa 2015). En solución acuosa únicamente el catión Th^{+4} es reportado, el cual es fuertemente adsorbido en arcillas y ácidos húmicos a pH neutro. La concentración de torio en aguas es generalmente baja (Landa 2007). Normalmente se encuentra concentrado en rocas ígneas ácidas desde donde puede ser transportado por desgaste en forma de suspensión coloidal. Puede también ser encontrado en rocas sedimentarias, especialmente en areniscas gruesas y depósitos de gravas (Kovas et al 2013).

El Uranio se presenta en dos estados de oxidación U^{+4} y U^{+6} , los procesos redox son los dominantes en la movilidad en el ambiente. Los compuestos de uranio presentan gran movilidad bajo condiciones oxidantes, especialmente condiciones ácidas o aguas ricas en carbonatos y son inmóviles en ambientes reductores, condiciones en las cuales son fuertemente adsorbidos en la materia orgánica, partículas de arcilla y óxidos de hierro, especialmente a pH en el rango 5.0-8.5. Durante los procesos de desgaste y

erosión el U^{+4} es fácilmente oxidado a U^{+6} , y fácilmente movilizado en aguas subterráneas, como catión uranilo UO_2^{+2} , o complejos de este catión con fluoruros, carbonatos o fosfatos, dependiendo del pH, en condiciones ácidas predominan el catión uranilo y los complejos con fluoruros y en condiciones neutras o básicas los complejos con carbonatos o fosfatos (Al-Hilal y Aissa 2015; Landa 2007; Silva et al. 2006)

El radio es un metal alcalinotérreo que forma cationes Ra^{+2} , cuyas sales son moderadamente solubles en agua, y cuya solubilidad decrece por aumento de la concentración de sulfatos o carbonatos. En caso de cuerpos de agua con elevada concentración de sulfatos, el radio precipita como sulfato de $M(Ra)SO_4$ y en los cuerpos de agua con elevada presencia de carbonatos precipita como $M(Ra)CO_3$, donde M corresponde a Calcio o Bario. Además de la co-precipitación con sales de calcio y bario el radio puede ser removido de cuerpos de agua por procesos de adsorción a superficies activas, hidrólisis y formación de complejos. La solubilidad de las sales de radio cambia con el pH aumentando a pH muy bajos y muy altos (Landa 2007).

El ^{226}Ra es uno de los radionucleidos más significativos en términos de toxicidad biológica, ya que es un emisor alfa de período de semidesintegración largo y presenta comportamiento químico similar al calcio, y por lo tanto lo puede reemplazar en los organismos (Trabidou et al. 2005; Djelic et al. 2016).

El radón es un gas noble, por lo tanto prácticamente inerte y presenta gran solubilidad en agua (Valkovic 2000). Es frecuente encontrarlo en la naturaleza en la atmósfera y en los cursos de agua. Desde el punto de vista radiológico los tres isótopos de las series naturales ^{222}Rn ($t_{1/2} = 3.83$ días), ^{220}Rn ($t_{1/2} = 55.6$ segundos) y ^{219}Rn ($t_{1/2} = 55.6$ segundos) presentan gran impacto a nivel de irradiación interna principalmente por inhalación. De acuerdo a la “Environmental Protection Agency” (EPA) el radón representa la segunda causa de muerte por cáncer pulmonar en Estados Unidos (EPA 2017).

El plomo es un metal, perteneciente al grupo 14 de la tabla periódica y puede presentar tres estados de oxidación Pb^0 , Pb^{+4} y Pb^{+2} . En la naturaleza el plomo existe principalmente como Pb^{+2} , formando sales insolubles con carbonatos, cloruros, fluoruros, fosfatos y sulfatos. El Pb^0 es encontrado en la naturaleza pero con escasa

ocurrencia (Moreira 1993). El plomo se adsorbe en el material particulado orgánico y en los cauces de agua se acumula en los sedimentos (Brenner et al. 1994).

El Polonio es un metaloide que presenta varios estados de oxidación Po^{-2} , Po^{+2} , Po^{+4} y Po^{+6} , siendo el Po^{+4} la forma más estable en solución acuosa formando sales estables con cloruros, bromuros, acetatos, nitratos y otros aniones inorgánicos. Una de las propiedades más importantes desde el punto de vista biológico es la tendencia a hidrolizarse y formar coloides con gran afinidad por el material particulado orgánico e inorgánico. Los procesos de adsorción y desorción están gobernados por el potencial redox (Ansoborlo et al. 2012).

A pesar de que todos estos radionucleidos están presentes en la corteza terrestre (excepción de ^{222}Rn y ^{220}Rn que dada su condición de gas puede migrar de ella a la atmósfera, o quedar retenido en suelos y rocas) su concentración varía notoriamente de un sitio a otro de acuerdo a la composición geológica del mismo; en la Tabla 3 se pueden apreciar los valores promedio mundiales así como de algunos sitios particulares reportados por UNSCEAR (UNSCEAR 2008).

<i>Concentración de actividad en suelo (Bq.kg⁻¹)</i>								
	⁴⁰ K		²³⁸ U		²²⁶ Ra		²³² Th	
	<i>Media</i>	<i>Rango</i>	<i>Media</i>	<i>Rango</i>	<i>Media</i>	<i>Rango</i>	<i>Media</i>	<i>Rango</i>
África								
Argelia	370	66–1150	30	2–110	50	5–180	25	2–140
Egipto	320	29–650	37	6–120	17	5–64	18	2–96
Libia	270	265–282	10.5	8.7–12.8	8.8	8.3–9.4	9.5	7.6–9.7
América								
México	244	115–416						
Estados Unidos	370	100–700	35	4–140	40	8–160	35	4–130
Costa Rica	140	6–380	46	11–130	46	11–130	11	1–42
Cuba	328	20–2260			21.4	0.5–115	5	0.05–20
Argentina	654	559–773						
Asia								
China	440	9–1800	33	2–690	32	2–440	41	1–360
India	400	38–760	29	7–81	29	7–81	64	14–160
Japón	310	15–990	29	2–59	33	6–98	28	2–88
Malasia	310	170–430	66	49–86	67	38–94	82	63–110
Tailandia	230	7–712	114	3–370	48	11–78	51	7–120
Irán	640	290–710			30	20–97	39	13–55
Iraq	469	146–518			16.8	0.5–35		
Kuwait	332	4–496	19	6–65	12	2–28	10	1.5–16
Siria	270	87–780	23	10–64	20	13–32	20	10–32
Europa								
Dinamarca	460	240–610			17	8.5–29	19	8.1–30
Finlandia	640	300–1200	41	13–110	41	13–110	46	20–115
Islandia	140	40–240	10		8.5	2–15	6.5	0.5–11
Noruega	850		50		50		45	
Suecia		600–1180		10–1000		10–1000		2–100
Bélgica	460	100–1000			32	6–70	33	6–53
Alemania		40–1340		11–330	70	5–200		7–134
Irlanda	418	11–1317	39	4–543	46	6–292	25	3–71
Holanda		120–730		5–53	23	6–63		8–77
Portugal	840	220–1230	49	26–82	44	8–65	51	22–100
España	578	31–2040			38	8–310	41	2–258
Suiza	370	40–1000	26	9–80	37	17–140	25	4–65
Reino Unido		0–3200		2–330	37			1–180
Bulgaria	400	40–800	40	8–190	45	12–210	30	7–160
República Checa	613	262–1599			44	18–275	41	18–168
Hungría	370	79–570	29	12–66	33	14–76	28	12–45
Polonia	410	123–1020	25.2	4.2–124	25.2	4.2–124	24.7	3.7–86
Rumania	490	250–1100	32	8–60	32	8–60	38	11–75
Rusia	520	100–1400	19	0–67	27	1–76	30	2–79
Eslovaquia	520	200–1380	32	15–130	32	12–120	38	12–80
Eslovenia	374	15–1410			41	2–208	35	2–90
Croacia	423	107–748	53	19–135	43	18–80	37	10–72
Grecia	383	12–1570	45	10–190	29	1–310	28	1–193
Oceanía								
Nueva Zelanda	370	<40–740			23	<4–56	29	<4–63
PROMEDIO MUNDIAL								
	400	140–850	35	17–60	35	17–60	30	11–64

Tabla 3: Concentración de actividad de ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²³²Th y ⁴⁰K en la corteza terrestre

En los últimos años se ha generado una investigación sistemática en el mundo de los radionucleidos presentes en el suelo, principalmente los denominados primordiales debido a que éstos (como ya se mencionó) son de los mayores contribuyentes a la dosis efectiva que reciben los individuos. Los mayores contribuyentes a esa dosis son el ^{40}K en un 35%, los radionucleidos de la serie del ^{232}Th en un 50 % y finalmente los radionucleidos de la serie del ^{238}U en un 15 %. Debido a que la radiación gamma es parcialmente atenuada por el suelo, los radionucleidos que aportan a la tasa de dosis son aquellos que se encuentran en los 30 cm superiores del suelo (Valkovic 2000). A modo de ejemplo de dichas investigaciones a lo largo del globo se pueden citar Italia (Guidotti et al. 2015), España (Arnedo et al. 2017; Blanco Rodríguez et al. 2008), Grecia (Psichoudaki y H. Papaefthymiou 2008), Eslovenia (Kovacs et al. 2013), Serbia (Forkapic et al 2017), India (Bangotra et al 2016), Siria (Al-Hilal y Aissa 2015), Nigeria (Agbalagba et al. 2012, Ajayi 2009, Arogunjo et al. 2009), Jordania (Al-Hamarneh et al. 2009), Iran (Kardan et al 2017), Kuwait (Alazemi et al. 2016), Tailandia (Santawamaitre et al. 2014), Malasia (Aziz Saleh et al 2013), Estados Unidos (Hannan et al. 2015), México (Mandajuano et al. 2016), Argentina (Montes et al 2016, 2012), Brasil (Malanca et al. 1996; Ribeiro et al. 2016). También se han llevado a cabo investigaciones de los mencionados radionucleidos en las arenas costeras (ya sean arenas negras o no); como ejemplo se pueden mencionar Brasil (Freitas y Alencar 2004, Veiga et al. 2006), Grecia (Papadopoulos et al. 2016) e Italia (Caridi et al. 2016).

De la mano de la investigación de los radionucleidos primordiales en suelo, se han llevado a cabo también investigaciones sistemáticas de la concentración del gas radón (^{222}Rn y ^{220}Rn) tanto interior como exterior a los hogares. Es así que existen mapas de Radón en diversos países como ser India (Ramachandan y Sathish 2011), España (Quindos Poncela et al. 2004; Sainz-Fernández et al. 2014), Francia (Lelsh et al. 2010), Austria (Gruber et al. 2015). También existen trabajos donde se ha determinado por lo menos en algunas regiones para estudios particulares, como Bolsena, Italia (Cinelli et al. 2014), Northamptonshire, Reino Unido (Denman et al. 2015) y el Parque Nacional de las Cavernas de Carlsbad, México (Cunningham y LaRock 1991). La Unión Europea lanzó en 2006 un proyecto para generar el mapa de radón de la Unión Europea como parte del Atlas Europeo de Radiactividad Natural (Tollesfen et al. 2014).

Los radionucleidos se adsorben a los componentes del suelo (materia orgánica, arcillas y carbonatos) y son solubilizados en determinadas condiciones por cuerpos de agua. Las características de ambos medios afectan los procesos de adsorción – desorción y por lo tanto la migración de los mismos y la translocación de los radionucleidos a los distintos organismos, así como la fijación biológica de los mismos en los distintos ecosistemas terrestres y acuáticos (Koch-Steindl y Prohl 2001 y Forkapic et al 2017). Es así que se han llevado a cabo numerosas investigaciones en otros compartimentos. Se han reportado múltiples estudios de los distintos radionucleidos naturales en aguas superficiales y subterráneas, como ejemplo de ello se puede citar España (Fonollosa et al. 2015), Túnez (Chkir et al. 2009), Serbia (Drndarski et al. 1996), Polonia (Skwarzec et al. 2009), India (Yadav y Sarin 2009), Rusia (Shuktomova y Rachkova 2011), Estados Unidos (Landsberger y George 2013), Arabia Saudita (Shabana y Kinsara 2014; Alkhomashi et al. 2016), y Francia y Guyana Francesa (Van Beek et al. 2010). Los radionucleidos naturales también han sido reportados en agua de lluvia (Gómez Escobar et al. 1996; Ibikunle et al. 2016). Demás está decir que existen múltiples estudios de los radionucleidos naturales en agua potable. En la Tabla 4 se muestran algunos resultados mundiales para agua potable publicados por UNSCEAR.

Concentración de actividad (mBq/L)

Origen		²³⁸ U		²³² Th		²²⁶ Ra		²²⁸ Ra		²¹⁰ Pb		²¹⁰ Po	
		Media	Rango	Media	Rango	Media	Rango	Media	Rango	Media	Rango	Media	Rango
Africa													
Maruecos	pozo	66	4.5–309			1	1.0–25	5	1.0–17.3				
	manantiales	5.3	0.6–8.5			651	9.1–3696	91.5	2.4–620				
	agua de canilla	4.8	2.5–15.7			7.3	0.46–46	1.9	<0.4–12				
América													
Estados Unidos			0.3–77	0.05			0.4–1.8		0–0.5		0.1–1.5		
Cuba	Suministro público					27							
Argentina	pozo privado		0.37–3100			2.24	<0.3–22						
	embotellada	7.2	0.5–47			1.3	<0.3–2.4						
Brasil	mineral					27	8.0–83	97	12–385	66	20–102		
	subterránea	29.7	0.25–186			14	1–3790	45	2–3800	40	9–980		
Asia													
China			0.1–700	0.04–12			0.2–120						
India	potable		0.09–1.5							2.19–11.48		1.66–7.04	
Europa													
Francia			4.4–930	0–4.2			7–700						
Alemania		5	0.4–600	0.1	0.1–4	5	0.5–32	3	0.5–23	1.5	0.2–170	0.5	0.1–40
			<10–30				30–30200		410–7700		<200–300		60–80
Italia	canilla		0.2–199				<1.2–23		1.5–12				0.13–5.9
	mineral		<0.5–119				0.5–126		0.1–44				<0.04–24
Portugal						27	<3–2 185			18.5	2–392		
España	suministro público	4	0.028–7.6	2.03	0.01–9.6	1.75	1.3–2.2	<84.5		18.7	0.23–59	3.63	1.8–19.3
	embotellada					86.7	2–600						
República Checa	Suministro público	45	<2–1080			28	40–302				<40–346	9	<2–71
Hungría	Suministro público	100	1–934			43	8–238						
Polonia		7.3		0.06			1.7–4.5			1.6		0.5	
Rusia	Suministro público					7.4	2.6–23.4	12.6	2.4–34	26.9	2.3–67.9	2.72	1.2–7.1
Grecia	Lagos para suministro público		0.19–17.27										

Tabla 4: Concentración de actividad de los radionucleidos naturales en agua potable (UNSCEAR 2008)

También han sido objeto de estudio los distintos radionucleidos en sistemas vegetales y la transferencia del suelo a los mismos, como ejemplo de ello se puede citar Siria (Al-Mascri et al. 2008; 2015), Brasil (Galhardi et al. 2017, Sussa et al 2013). Por otra parte, se ha reportado su bioacumulación en organismos, como ser la bioacumulación de radio en mejillones en Australia (Bullhöfer et al. 2011), ²¹⁰Po en moluscos y algas del mar Rojo (Sirelkhatim et al. 2008), y en peces en Canadá (Chen et al. 2016) y en Nueva Zelanda (Pearson et al. 2016).

Los anteriores son sólo algunos ejemplos ilustrativos del impacto de los radionucleidos en el ambiente y de la diversidad de investigaciones que se han llevado a cabo. A medida que se desarrollen los resultados de esta Tesis se irán comparando con los obtenidos por éstos y otros investigadores en los distintos sitios del planeta.

1.V. Cuantificación de radionucleidos naturales en el ambiente

Las distintas técnicas de cuantificación de los radionucleidos en general y en el ambiente en particular se basan en las características físicas y radioquímicas de los mismos, así como también las características fisicoquímicas de las matrices donde se encuentren y la concentración de actividad de los mismos.

Existe gran diversidad de técnicas analíticas disponibles, tales como espectrometría gamma, espectrometría alfa, centelleo líquido, conteo alfa y beta total, espectrometría de aceleración de masas (AMS), espectrometría de masas con plasma acoplado inductivamente (ICP-MS), entre otras. Para la cuantificación de los radionucleidos de interés para esta Tesis, ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{210}Pb , y ^{40}K se utilizaron espectrometría gamma y conteo alfa y beta total.

Los radionucleidos mencionados, o alguno de los productos de decaimiento con el o los cuales pueden estar en equilibrio secular, son emisores gamma, es así que la espectrometría gamma es una técnica ampliamente difundida para su cuantificación. La espectrometría gamma es una técnica no destructiva que permite cuantificar simultáneamente los radionucleidos naturales antes mencionados así como diversos radionucleidos artificiales emisores gamma (o cuyos productos de decaimiento sean emisores gamma). Presenta como ventaja adicional que requiere relativamente escaso procesamiento de muestras (en la mayoría de las matrices), pero por otro lado suele requerir “grandes” volúmenes de muestra y tiempos de conteo (dependiendo obviamente de los radionucleidos a determinar, sus concentraciones de actividad y la matriz de la muestra, así como del sistema de espectrometría gamma disponible).

En la Tabla 5 se muestran las emisiones gamma, las probabilidades de emisión y los períodos de semidesintegración de los radionucleidos de las series de ^{238}U y ^{232}Th así como del ^{40}K . Se listan únicamente las energías de emisión hasta 2000 keV y cuya probabilidad de emisión es mayor a 2 %. A mayores energías la eficiencia de conteo de los detectores es muy baja por lo que el conteo para esas emisiones es muy escaso; lo mismo pasa para las emisiones de muy baja probabilidad.

	Radionucleido	t_{1/2}	Energía emisión γ (keV)	Probabilidad de emisión (Iγ) %
<i>Serie ²³⁸U</i>				
	²³⁴ Th	24.10 d	63.29	3.7
			92.38	2.13
			92.80	2.10
	²²⁶ Ra	1620 a	186.21	3.64
	²¹⁴ Pb	27.06 m	241.9950	7.251
			295.2228	18.42
			351.9321	35.60
	²¹⁴ Bi	19.9 m	609.320	45.49
			768.360	4.894
			934.056	3.107
			1120.294	14.92
			1238.122	5.834
			1377.669	3.988
			1407.988	2.394
			1509.210	2.130
			1729.595	2.878
			1764.491	15.30
			1847.429	2.025
	²¹⁰ Pb	22.20 a	46.539	4.25
<i>²³²Th</i>	²²⁸ Ac	6.15 h	129.065	2.42
			209.253	3.89
			270.245	3.46
			328.000	2.95
			338.320	11.27
			463.004	4.40
			674.75	2.1
			794.947	4.25
			911.204	25.8
			964.766	4.99
			968.971	15.8
			1588.20	3.22
	²²⁴ Ra	3.619 d	240.986	4.10
	²¹² Pb	10.64 h	238.632	43.6

		300.087	3.30
²¹² Bi	60.55 m	727.330	6.67
²⁰⁸ Tl	3.053 m	277.371	6.6
		510.77	22.6
		583.187	85.0
		860.557	12.5
⁴⁰ K	1.248x10 ⁹ a	1460.820	10.66

Tabla 5: Principales emisiones gamma, período de semidesintegración y probabilidad de emisión (> 2 %) de los radionucleidos de las series naturales de ²³⁸U y ²³²Th, y del radionucleido natural ⁴⁰K (IAEA 2017)

La detección y cuantificación de radionucleidos a través de sus emisiones gamma se realiza por espectrometría gamma, utilizando para ello distintos tipos de detectores: detectores de centelleo, de semiconductores e inclusive en algunos casos detectores gaseosos. De ellos, actualmente los detectores más utilizados para los sistemas de espectrometría son los detectores de semiconductores de germanio de alta pureza (HPGe) y los detectores de centelleo sólido de yoduro de sodio activado con Talio (NaI(Tl)). Como todo sistema de detección ambos tienen sus ventajas y desventajas. A continuación se describirán las características relevantes para el desarrollo de esta tesis. No se detalla aquí ni teoría de espectrometría gamma, ni de la interacción de la mencionada radiación con la materia, debido a que están ampliamente detallados en literatura (Gilmore 2008, Knoll 2000, Tsoufanidis 1983), tampoco se profundiza en las características de los distintos detectores, una descripción detallada de ellos se puede encontrar en Fornaro 2008.

Dos de los factores relevantes en la selección de un sistema de espectrometría gamma para determinaciones de muestras ambientales, son la resolución en energía y la eficiencia de detección.

Se entiende por espectro diferencial de una muestra emisora gamma, al gráfico variación de actividad (dA) respecto a la variación de energía (dE) en función de la energía de la radiación.

En un espectro diferencial de radiación gamma se entiende por resolución en energías a la capacidad del sistema de “resolver” o “separar” los picos del espectro, o sea la capacidad del sistema de determinar la(s) energía(s) de la radiación en estudio. Normalmente se expresa en función del ancho de pico a mitad de altura “full width at half maximum” (FMWH), el cual está relacionado con la desviación estándar de distribución Gaussiana que representa el fotopico de la radiación gamma determinada, como se muestra en la Figura 6.

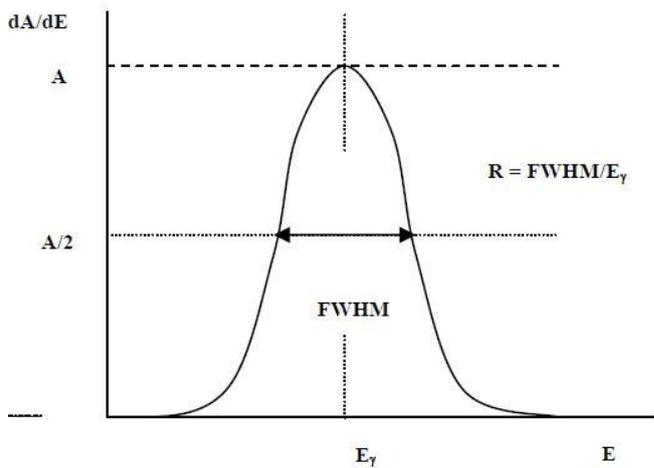


Figura 6: Resolución en energía de un detector para una única radiación gamma, cuyo fotopico posee distribución Gaussiana, con desviación estándar σ . A: actividad de la muestra emisora gamma, E: energía de la emisión, E_γ : energía de la emisión gamma, FWHM: ancho de pico a mitad de altura.

En función del FMWH se define para espectrometría la resolución de acuerdo a la ecuación 1, donde E_γ corresponde a la energía del fotopico de la emisión gamma (Knoll 2000):

$$R = \frac{FMWH}{E_\gamma} \qquad \text{Ecuación 1}$$

Esta definición es particularmente confusa, dado que a mayor FWHM, mayor R y por tanto menor poder de resolución en energía del sistema. Es así que actualmente, la resolución se indica simplemente como el FWHM del detector para energía(s) de

valore(s) significativo(s) (por ejemplo la emisión correspondiente a 1333 keV de una fuente de ^{60}Co).

La resolución en energía es muy diferente, de un detector de centelleo sólido de NaI(Tl) que actualmente es del orden de 5 a 10 % (es decir 50-130 keV para el fotopico de 1333 keV del ^{60}Co), al de un detector de semiconductor como el HPGe, donde por ejemplo en geometría coaxial se alcanzan resoluciones del orden de 800 – 1200 eV para 122 keV y de 1.7 – 2.3 keV para el fotopico de 1333 keV del ^{60}Co . En la Figura 7 se muestra un espectro de radiación de fondo obtenido con detectores de centelleo (NaI y plástico), así como de semiconductores (Germanio de Alta Pureza (HPGe) y Cadmium Zinc Telluride (CZT)), donde se pueden apreciar las diferentes resoluciones en energía de los distintos detectores.

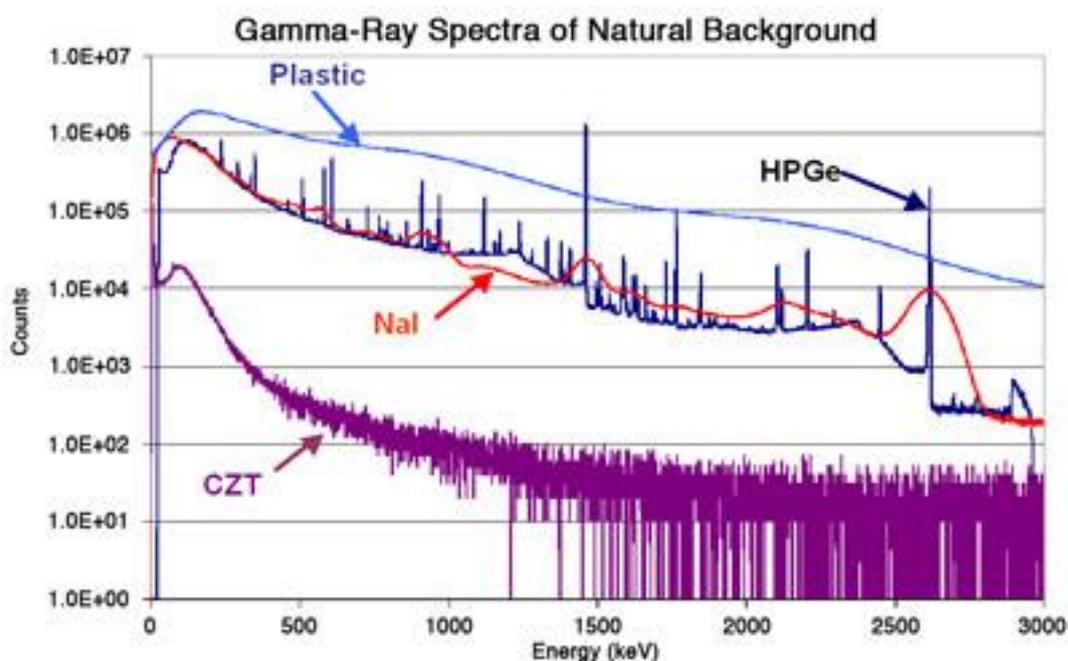


Figura 7: Espectro de radiación de fondo obtenido con distintos detectores, de semiconductores y centelleo (ORTEC- AMETEK 2018).

Para cuantificar en muestras ambientales radionucleidos de las series de ^{238}U y ^{232}Th , los cuales poseen como se indicó en la Tabla 5, múltiples emisiones gamma, algunas de ellas de energías muy similares, es necesario contar con un detector que posea buena resolución en energías. La resolución en energías es la principal razón del empleo de

detectores de germanio de alta pureza (HPGe) para el desarrollo de esta Tesis así como el uso generalizado de los sistemas de espectrometría gamma con detectores de HPGe, aún cuando como se detalla a continuación éstos, en general, poseen menor eficiencia de detección que los de centelleo sólido, existiendo algunos de eficiencias aún mayores (hasta 200 %).

La eficiencia del sistema detector es de hecho la sensibilidad del equipo, o sea el cambio más pequeño de actividad que puede ser detectada en una medida de variación en cuentas. Debido a que la radiación gamma experimenta diversas interacciones antes de ser detectada y a que el detector no es ideal, usualmente dicha eficiencia es menor al 100 % (Knoll 2000).

Es conveniente diferenciar entre eficiencia absoluta, eficiencia intrínseca y eficiencia de fotopico.

La eficiencia absoluta es definida de acuerdo a la siguiente ecuación:

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\text{número de pulsos registrados}}{\text{número de cuantos de radiación emitidos por la fuente}} \quad \text{Ecuación 2}$$

La eficiencia absoluta depende no sólo de las propiedades del detector sino también de la geometría de conteo, principalmente de la distancia fuente – detector.

La eficiencia intrínseca es definida de acuerdo a la siguiente ecuación.

$$\varepsilon_{int} = \frac{\text{número de pulsos registrados}}{\text{número de cuantos de radiación incidentes en el detector}} \quad \text{Ecuación 3}$$

De esta manera la eficiencia intrínseca ya no incluye el ángulo sólido subtendido por el detector como un factor implícito. Las dos eficiencias están relacionadas para fuentes isotrópicas de acuerdo a la ecuación 4.

$$\varepsilon_{int} = \varepsilon_{abs} \cdot (4\pi/\Omega) \quad \text{Ecuación 4}$$

donde Ω representa el ángulo sólido del detector, desde la posición de la fuente.

La eficiencia intrínseca depende entonces principalmente, del material detector, de la energía de la radiación y del espesor del detector en la dirección de la radiación

incidente. Si bien existe influencia de la distancia fuente - detector, ésta es de menor relevancia.

La eficiencia de fotopico se define de acuerdo a la siguiente ecuación:

$$\varepsilon_{fotopico} = \varepsilon_{int} \frac{A_{neta\ fotopico}}{A_{neta\ total}} \quad \text{Ecuación 5}$$

donde $A_{neta\ fotopico}$ corresponde al área bajo el espectro del fotopico, y $A_{neta\ total}$ al área total bajo el espectro.

La eficiencia de conteo también se puede categorizar en función de la naturaleza de los eventos registrados: si se aceptan todos los pulsos registrados por el detector, entonces se denomina eficiencia total, de esta manera no se diferencian las interacciones en función de la energía, y por lo tanto se asume que todas las interacciones sin importar su energía van a ser contadas por el detector. Por otro lado la eficiencia de fotopico asume que únicamente aquellas interacciones que depositan toda la energía de la radiación incidente son registradas (Knoll 2000).

Normalmente, la eficiencia reportada de detección para espectrometría gamma es la eficiencia intrínseca de fotopico. Por razones históricas la eficiencia de los detectores de HPGe se expresa como “eficiencia relativa”, relativa a la eficiencia de un detector de centelleo de NaI(Tl) de 3”x 3”, usualmente expresada para el fotopico de 1333 keV del ^{60}Co para detectores HPGe con geometría coaxiales. En la actualidad existen detectores de HPGe con eficiencias relativas hasta de 200 % (ORTEC – AMETEK 2018).

En una aplicación determinada, la elección del detector finalmente es un balance entre la eficiencia de conteo y la resolución en energía (Knoll 2000), como también se puede apreciar en la tabla con las características de los detectores de germanio de alta pureza (ORTEC-AMETEK 2018)

Aún cuando no es de importancia en medidas ambientales de baja actividad, en todos los sistemas de conteo con detectores – independiente de si es de semiconductor, centelleo o gaseosos - existe un tiempo mínimo de separación entre dos eventos para

que puedan ser detectadas y separados como dos pulsos. Este tiempo puede estar limitado por procesos en el detector o la electrónica del sistema, y es denominado tiempo muerto del sistema de conteo. El buscar que el tiempo muerto (o la corrección debida a él) sea pequeño cobra importancia para actividades altas, que no se dan en el caso de esta Tesis.

La espectrometría gamma con detectores de germanio de alta pureza (HPGe), es ampliamente utilizada para la cuantificación de radionucleidos naturales y artificiales. Algunos ejemplos se pueden encontrar en bibliografía en muestras de suelo, arenas y sedimentos (de Paiva et al 2015; Guidotti et al, 2015; Kovacs et al. 2013), en materiales de construcción (Cazula et al. 2015; Chang et al. 2008; Pantelic et al. 2015) y “Naturally Occurring Radioactive Materials” (NORM) y “Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials” (TENORM) (Billa et al. 2015; Shams et al. 2017; Xhixha et al. 2015), así como también es ampliamente utilizada para otras matrices vegetales, animales (Assaduzzamen et al, 2014; Bollhöfer et al 2011); e inclusive aguas (van Beek et al. 2010).

Los detalles del sistema de espectrometría gamma utilizado en esta Tesis, así como las energías empleadas para la identificación y cuantificación de los distintos radionucleidos, y los tiempos muertos en las determinaciones se detallarán en los distintos apartados de las secciones 3 y 4.

En algunas matrices, especialmente muestras acuosas, debido a la baja concentración de actividad de los distintos radionucleidos, la cuantificación por espectrometría gamma puede implicar la utilización de grandes volúmenes de muestra y largos procesos de concentración, es así que es común utilizar otras técnicas analíticas. Debido a que estos radionucleidos también son emisores alfa, beta o pueden estar en equilibrio secular con algún producto de decaimiento emisor alfa y/o beta, los mismos se pueden cuantificar por espectrometría alfa o conteo alfa y beta, y centelleo líquido. Al igual que la espectrometría gamma, estas técnicas tienen ventajas y desventajas. Estas técnicas en general, y el conteo alfa y beta utilizando un detector proporcional en particular (técnica utilizada en esta Tesis para la cuantificación de radionucleidos naturales en aguas), poseen como principal ventaja respecto a la espectrometría gamma, su límite de detección. Cabe señalar aquí que el límite de detección para el conteo alfa y beta total es mayor que el límite de detección de espectrometría alfa y el centelleo líquido, por

ejemplo. La principal desventaja de todas estas técnicas es que requieren procesos de separación radioquímica previos a la cuantificación de los radionucleidos.

Los detalles del sistema de conteo alfa y beta total utilizado en esta Tesis se detallarán en los distintos apartados de las secciones 3 y 4.

1.VI. Antecedentes de su incidencia en aspectos sociales, laborales y productivos en el mundo y en Uruguay

La presencia de los radionucleidos – naturales y artificiales – en los distintos compartimentos ambientales, ha hecho que sea necesario el estudio de la incidencia de los mismos en el ser humano.

Los distintos radionucleidos en función de sus propiedades fisicoquímica, como se describió en 1.IV, se pueden distribuir y acumular en distintos sistemas. En la Figura 8 se muestra un esquema de la incidencia de los radionucleidos en el ser humano, tanto por irradiación externa como interna (también denominada contaminación).

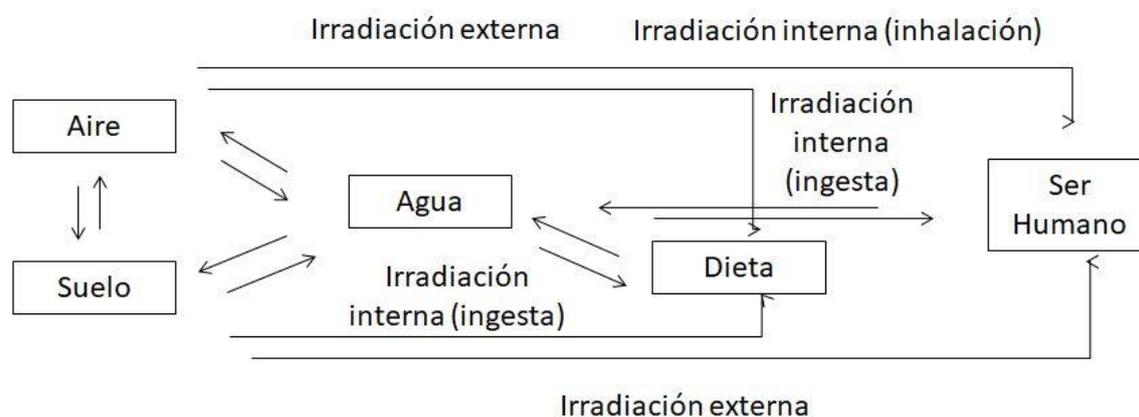


Figura 8: Principales fuentes de incidencia de los radionucleidos en el ser humano, tanto por irradiación externa como interna

Como se puede apreciar en la mencionada Figura, las fuentes de irradiación pueden ser múltiples, es así que se hace necesario fijar criterios para la evaluación de su incidencia en el ser humano, individualmente y colectivamente.

Distintos organismos internacionales han establecido niveles de referencia, y límites de intervención, para la concentración de los distintos radionucleidos naturales en compartimentos naturales, como agua (WHO 2011), suelo (UNSCEAR 2008), así como

productos industriales, como son por ejemplo los materiales de construcción (Council Directive 2013).

Diversos investigadores han desarrollado índices de evaluación radiológica, para irradiación externa e interna, por radionucleidos naturales en suelo, aire, agua y alimentos, entre otros – que podemos denominar aspectos sociales - , así como para aquellas situaciones donde los trabajadores están expuestos a fuentes de radiación ionizante – que podemos denominar aspectos laborales. Existen situaciones donde los trabajadores están expuestos a fuentes de radiación natural lo suficientemente elevada para ser considerada como un riesgo ocupacional. En general los trabajadores están sujetos a controles de autoridades reguladoras nacionales, y se realiza un control individual, mientras que esto no es común para miembros del público en general, razón por la cual las dosis se calculan en base a monitores ambientales e índices y modelos de simulación (UNSCEAR 2008). Finalmente también existen criterios de evaluación del riesgo en las cadenas productivas, principalmente de alimentos - que podemos denominar aspectos productivos. La concentración de los radionucleidos naturales en alimentos varía debido a diferencia en los niveles de concentración de actividad de los radionucleidos en el suelo, las condiciones climáticas, así como los hábitos de cultivo. Esto, junto a las diferencias en los hábitos alimentarios de las distintas poblaciones, hace que sea difícil establecer los valores de referencia (UNSCEAR 2008)

Existen múltiples investigaciones a nivel mundial sobre la incidencia de los radionucleidos naturales en el ser humano. La dosis equivalente efectiva anual para irradiación externa debida a la presencia de los radionucleidos naturales se ha evaluado en distintas partes del mundo por ejemplo en suelo (Agbalagba et al. 2012; Arnedo et al. 2017; Bangotra et. al 2016; Montes et al. 2012; Santawamaitre et al 2014), y en arena de playa (Barros y Pecequilo 2014; Caridi et al. 2016; Freitas y Alencar 2004; Guembou Shouop et al. 2017). También se ha determinado el exceso de radiación gamma a la que están expuestas las poblaciones por la presencia de los radionucleidos naturales en los materiales de construcción (Chang et al. 2008; Döse et al. 2016; Nuccetelli et al. 2015; Pantelic et al. 2014; Sas et al. 2015). La dosis por irradiación interna debida al agua de consumo ha sido evaluada en diversos países (Bonotto y Bueno 2008; Calin et al. 2015; Desideri et al. 2017; Díaz – Francés et al 2013; Grande y Risica 2015; Hu et al. 2017; Mashiatullah et al. 2016; Mohapatra et al. 2014; Suursoo et al. 2017; Walsh et al. 2014). La dosis equivalente interna por ingesta de alimentos también ha sido evaluada

(Asaduzzaman et al. 2015; Cadova et al. 2017; Das et al. 2017; Díaz-Francés et al. 2015; Jayanthi et al. 2014; Meli et al. 2017; Patra et al. 2014; Rosa et al. 2015; Roselli et al. 2017; Sathyapriya et al. 2017) a lo largo y ancho del planeta.

En Uruguay, existe desde el 2003 un Plan de monitoreo de radiactividad ambiental, llevado a cabo por el Ministerio de Industria, Energía y Minería (MIEM), el cual incluye la determinación de radionucleidos naturales y antropogénicos en aguas, alimentos (productos lácteos y cárnicos principalmente) así como suelos y sedimentos (Odino et al. 2017). Si bien dicho plan incluye muestreos de alimentos producidos en todo el País, la información publicada, hasta el momento, no incluye resultados para el departamento de Rocha.

Dada la situación de escasa información en el País, y el creciente interés mundial hacia el conocimiento de las concentraciones de los radionucleidos naturales en el ambiente, así como su incidencia en el ser humano, se consideró importante realizar un estudio exhaustivo de la distribución de los radionucleidos naturales en el País. Es por ello que se comenzó dicho estudio en la franja costera del Departamento de Rocha, específicamente en el sitio RAMSAR 290, abarcando diferentes compartimentos, como ser arena, suelo, agua, flora silvestre, así como la incidencia en la dosis equivalente anual por irradiación externa e interna en las poblaciones permanente del sitio, y en los turistas que lo visitan anualmente.

A medida que se vaya desarrollando esta Tesis, se detallarán los índices radiológicos y criterios utilizados, y se compararán con los resultados obtenidos por estos y otros investigadores a nivel nacional e internacional.

2. OBJETIVOS

Objetivo general

Estudiar la irradiación y contaminación radiactiva ambiental del departamento de Rocha, así como sus implicancias sociales, laborales y productivas.

Objetivos específicos

- Realizar un mapeo de la dosis radiactiva en la zona costera del Departamento de Rocha.
- Estudiar la contaminación radiactiva natural en los distintos compartimentos de la franja costera del sitio RAMSAR 290.
- Estudiar la incidencia de los resultados obtenidos en aspectos sociales, laborales y productivos del Departamento de Rocha.
- Concluir sobre la contaminación y la irradiación radiactiva naturales existentes en el ecosistema costero del Departamento de Rocha y de cómo ellos inciden en la calidad de vida de sus habitantes.

3. PARTE EXPERIMENTAL

3.I.1. Instalación de la infraestructura necesaria para los trabajos

Se realizó en conjunto con la Dirección General de Arquitectura, El Plan de Obras a Mediano y Largo Plazo (POMLP) de la UdelaR y otros integrantes del “Grupo de Desarrollo de Materiales y Estudios Ambientales” el diseño de los Laboratorios del Grupo específicos para llevar adelante la investigación. Además se seleccionó y se colaboró en la compra e instalación del equipamiento necesario.

En el mencionado laboratorio se instaló – entre otros equipos – un sistema de espectrometría gamma de alta resolución con detector de Germanio de alta pureza (HPGe) ORTEC-AMETEK GMX35P4-76-RB, acoplado a sistema de espectrometría DespecJr2.0, con su blindaje de Plomo. El mencionado blindaje fue diseñado y construido por el grupo en base a los diseños comerciales –con mejoras en su sistema de apertura-. El cristal de Germanio utilizado como detector posee 55.1 mm de diámetro y 77.9 mm de largo. El detector cuenta con ventana de fibra de carbono (0.9 mm de espesor) para reducir la radiación de fondo (background) presente en las ventanas de aluminio.

Las siguientes características del sistema indicadas por el fabricante son: resolución en energía para el fotopico de 1.33 MeV del ^{60}Co 1.71 keV, eficiencia relativa para el fotopico de 1.33 MeV del ^{60}Co 1.71 keV 33.3 %, y enfriado por nitrógeno líquido (ORTEC-AMETEK 2014).

Se instaló asimismo en el laboratorio un generador de nitrógeno líquido Elan2 para disponer del nitrógeno líquido para enfriar el detector de Germanio y el preamplificador del sistema de espectrometría.

También se instaló un sistema contador proporcional alfa y beta total de bajo background CANBERRA LB4200, con 4 detectores. Las eficiencias en alfa y beta respectivamente reportadas por el fabricante para dichos detectores son: detector 1: 40.54 % (para fuente de ^{210}Po) y 54.87 % (para fuente de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$), detector 2: 40.75 % (para fuente de ^{210}Po) y 55.43 % (para fuente de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$), detector 3: 40.22 % (para fuente de ^{210}Po) y 56.91 % (para fuente de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) y detector 4: 40.22 % (para fuente de ^{210}Po) y 56.53 % (para fuente de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) (CANBERRA 2014).

Se seleccionaron y adquirieron los estándares radiactivos adecuados para las calibraciones en energía y eficiencia de cada equipo.

3.I.2. Consideraciones de seguridad radiológica

Debido a que se trabaja con muestras ambientales de baja actividad, el mayor riesgo de exposición radiológica está asociado a la manipulación de estándares. Para minimizar la exposición se adquirieron ladrillos de plomo, y se construyó un blindaje para los estándares radiactivos a ser utilizado en las calibraciones en energía y eficiencia de ambos equipos. Se realizó la categorización de los estándares de acuerdo a la norma UY117 de la Autoridad Reguladora Nacional (ARNR 2014). También se instaló un medidor de área Berthold Technologies LB134, para mantener las condiciones de seguridad radiológica.

Se realizaron los trámites de autorización frente a la Autoridad Reguladora Nacional en Radioprotección.

3.I.3. Optimización de las condiciones de trabajo

Una vez instalado el equipamiento descrito en 3.I.1. se verificaron y optimizaron las condiciones de funcionamiento.

El sistema de espectrometría gamma fue puesto en marcha y se realizó el ajuste de los parámetros del sistema utilizando una fuente puntual de ^{60}Co de 40.7 ± 1.2 kBq Eckert&Ziegler (certificada al 1/8/2015 12:00 UTC). Entre ellos se seleccionó el rango de energía de trabajo, la ganancia de trabajo, se chequeó la resolución del detector, así como se verificó el ruido y los tiempos muertos obtenidos.

El sistema fue calibrado en energía utilizando una fuente puntual múltiple (^{241}Am , ^{137}Cs , ^{60}Co) producida y calibrada por el “Laboratory of Radioactivity Standards” del Instituto de Energía Atómica POLATOM, Polonia (certificada el 22/3/2011). La calibración en eficiencia fue realizada para cada muestra en particular utilizando estándares certificados del “Organismo Internacional de Energía Atómica” (IAEA) con matrices similares.

El sistema contador proporcional alfa y beta total de bajo background CANBERRA LB4200, fue calibrado en eficiencia utilizando una fuente puntual de ^{241}Am (581 ± 17)

Bq certificada por Eckert & Ziegler y una fuente puntual de ^{36}Cl (574 ± 34) Bq certificada por Eckert & Ziegler el 23/6/2015 y el 20/7/2015 respectivamente, de acuerdo a recomendaciones del fabricante.

3.II. Delimitación de área de estudio

Las arenas negras, como se indicó anteriormente, se encuentran reportadas en el Departamento de Rocha en la franja costera y paralela a esta (Bossi y Navarro 2000), por dicha razón y con el fin de identificar las zonas de mayor riesgo radiológico se realizó primariamente un muestreo aleatorio de arena de Playa como se describe a continuación.

3. II.1. Muestreo de arena en la franja costera del SITIO RAMSAR 290, Departamento de Rocha

El muestreo se realizó durante la temporada estival (enero - marzo), desde el balneario La Paloma hasta la playa La Moza (en Santa Teresa). Tres muestras por Playa fueron tomadas superficialmente a una profundidad de 0 a 5 cm, a 3 metros de la línea de costa y distanciadas 100-500 m entre ellas, hasta obtener una masa aproximada de 2 kilos por muestra. Las muestras fueron empacadas en bolsas de polipropileno, identificadas y georeferenciadas hasta su transporte al Laboratorio. En la Figura 9 se muestran los puntos de toma de muestra y en la Tabla 6 las coordenadas de los mismos.

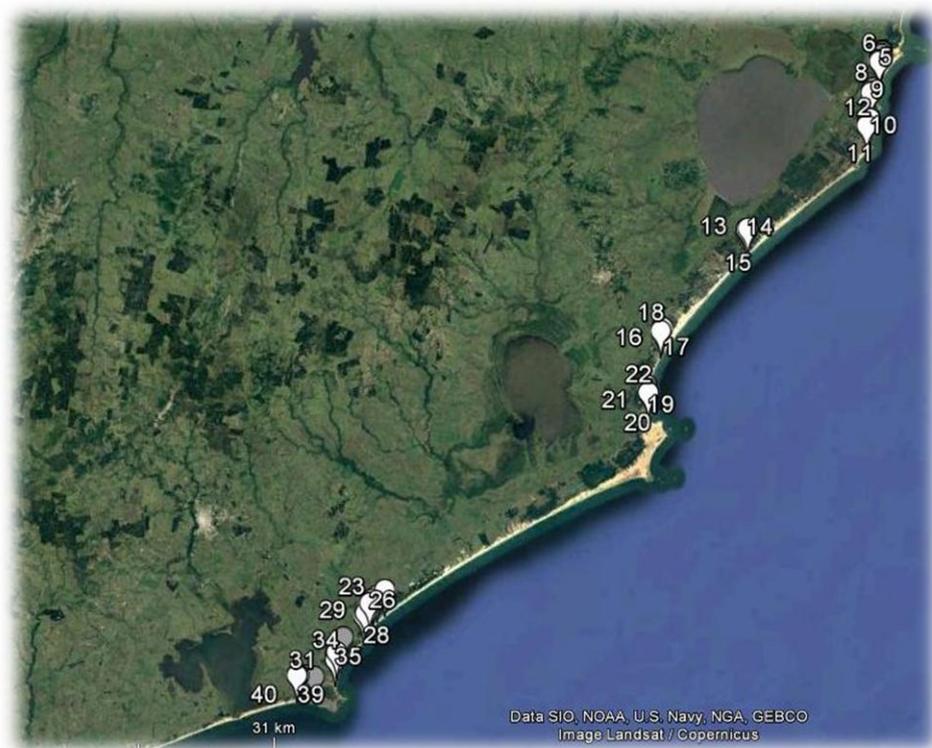


Figura 9: Lugares de muestreo de arena en la costa del Departamento de Rocha

Nº muestra	Playa	Latitud (S)	Longitud (O)
1	La Moza	33°58'14.92"	53°31'49.10"
2	La Moza	33°58'20.34"	53°31'50.44"
3	La Moza	33°58'29.93"	53°31'51.98"
4	Las Achiras	33°58'49.00"	53°31'57.80"
5	Las Achiras	33°58'52.96"	53°31'59.70"
6	Las Achiras	33°58'56.67"	53°31'58.85"
7	Playa Grande	34°0'36.83"	53°32'16.84"
8	Playa Grande	34°0'48.86"	53°32'24.57"
9	Playa Grande	34° 0'55.98"	53°32'25.92"
10	Punta del Diablo	34°2'27.33"	53°32'22.08"
11	Punta del Diablo	34°2'33.84"	53°32'20.24"
12	Punta del Diablo	34°2'59.39"	53°32'32.83"
13	La Esmeralda	34°9'58.90"	53°40'52.88"
14	La Esmeralda	34°10'1.07"	53°40'55.84"
15	La Esmeralda	34° 9'55.56"	53°40'49.03"
16	Aguas Dulces	34°16'33.82"	53°46'40.57"

17	Aguas Dulces	34°16'28.37"	53°46'37.13"
18	Aguas Dulces	34°16'40.23"	53°46'44.32"
19	Barra de Valizas	34°20'6.45"	53°47'26.68"
20	Barra de Valizas	34°20'17.36"	53°47'24.08"
21	Barra de Valizas	34°20'29.91"	53°47'18.45"
22	Barra de Valizas	34°20'33.39"	53°47'19.36"
23	San Antonio	34°33'57.93"	54°5'56.89"
24	Santa Isabel	34°34'21.82"	54°6'29.21"
25	Santa Isabel	34°34'35.00"	54°6'45.22"
26	Santa Isabel	34°34'51.79"	54° 7'0.25"
27	La Pedrera	34°35'40.32"	54° 7'19.54"
28	La Pedrera	34°35'41.42"	54° 7'23.19"
29	La Pedrera	34°35'30.33"	54° 7'16.51"
30	Costa Azul	34°38'9.68"	54°9'17.92"
31	Costa Azul	34°38'3.10"	54° 9'14.18"
32	Arachania	34°37'5.49"	54° 8'48.43"
33	La Aguada	34°38'16.65"	54°9'17.96"
34	La Aguada	34°38'26.38"	54°9'17.21"
35	La Aguada	34°38'32.18"	54°9'17.96"
36	Anaconda	34°39'38.33"	54°11'27.41"
37	Anaconda	34°39'40.66"	54°10'46.91"
38	La Serena	34°39'39.42"	54°11'56.77"
39	La Serena	34°39'40.53"	54°12'2.5"
40	La Serena	34°39'39.72"	54°12'5.85"

Tabla 6: Coordenadas geográficas de los lugares de muestreo en la temporada estival en el Departamento de Rocha

3.II.2. Preparación de muestras y cuantificación de ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K por espectrometría gamma

Las muestras de arena fueron secadas a 60°C hasta alcanzar una masa constante (estufa Labotecgroup), luego fueron tamizadas con tamiz de malla de 2 mm. Una vez secas fueron colocadas en recipientes de polietileno de geometría tipo Marinelli de volumen máximo 500 mL, selladas y almacenadas por 4 semanas, de manera de alcanzar el equilibrio secular entre el ^{226}Ra y sus productos de decaimiento de vida media corta y entre el ^{232}Th y sus productos de decaimiento de vida media corta, como se mencionó en la sección 1.IV. Los recipientes tipo Marinelli -que se muestran en la Figura 10- fueron elegidos debido a que con esta geometría se mejora la eficiencia de conteo, ya que rodean completamente al detector.



Figura 10: Recipiente utilizado para cuantificación por espectrometría gamma con geometría tipo Marinelli, colocado sobre el detector de alta pureza (HPGe)

Para la cuantificación de los radionucleidos antes mencionados – ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K - fue utilizado el sistema de espectrometría gamma de alta resolución con detector de Germanio de alta pureza (HPGe) ORTEC- AMETEK GMX35P4-76-RB, acoplado a sistema de espectrometría DespecJr2.0, descrito anteriormente.

La calibración en eficiencia fue realizada utilizando estándares certificados del “Organismo Internacional de Energía Atómica” (IAEA), IAEA RGU-1 para ^{226}Ra , IAEA RTh-1 para ^{232}Th y IAEA RK-1 para ^{40}K , en todos los casos utilizando igual geometría que las muestras (geometría tipo Marinelli) y matrices similares a las mismas.

Las muestras de arena de Playa y la radiación de fondo (background) fueron medidas durante 150000 segundos, mientras que los estándares de la IAEA y la radiación de fondo fueron medidos 3600 segundos. Los tiempos de medida fueron determinados para obtener un error en la medida de la actividad menor al 5 %, en la mayoría de las muestras.

Para identificar y cuantificar el radionucleido ^{232}Th se utilizó el fotopico del radionucleido ^{228}Ac de energía 911.2 keV y probabilidad de emisión 25.8 %, para identificar y cuantificar el radionucleido ^{226}Ra se utilizó el fotopico del ^{214}Bi de energía 609.3 keV y probabilidad de emisión de 45.5 %, mientras que para identificar y cuantificar el radionucleido ^{40}K se utilizó su propio fotopico de energía 1460.8 keV y probabilidad de emisión 10.7 % (IAEA 2017).

El ^{232}Th es principalmente emisor alfa; si bien posee emisiones gamma, éstas son de muy baja probabilidad de emisión (63.8 keV con probabilidad de emisión de 0.0263 % y 140.9 keV de probabilidad de emisión de 0.021 % (IAEA 2017)), razón por la cual se utilizan los fotopicos de los productos de decaimiento de vida media corta para su identificación y cuantificación, radionucleidos con los cuales se puede asumir que está en equilibrio secular luego de las 4 semanas de almacenamiento. Existen múltiples fotopicos que se pueden utilizar por separado o de manera conjunta para la cuantificación de ^{232}Th , como ejemplo se pueden citar trabajos donde se utiliza únicamente el mencionado fotopico (Agbalagba, et al 2012) o junto al fotopico de energía 2614.5 keV del ^{208}Tl (Kovac et al. 2013), junto a los fotopicos 583.1 keV de ^{212}Pb y 238.6 keV de ^{208}Tl (Al-Hamarneh et al 2009) y junto a los fotopicos de 383.3 keV y 968.9 keV del ^{228}Ac , 238.6 keV, 300.0 keV y 727.3 keV del ^{212}Pb , 1620.5 keV del ^{212}Bi , 583.1 keV y 2614.5 keV del ^{208}Tl (Santawamaitre et al. 2014). Para este trabajo se seleccionó el fotopico del ^{228}Ac de energía de 911.2 keV debido a que posee una probabilidad de emisión considerable, una energía tal que la autoabsorción está disminuida y que dada la muy buena resolución en energía del detector, se puede separar de los fotopicos de todos los demás radionucleidos presentes en las muestras.

El ^{226}Ra es emisor gamma, posee un fotopico de energía 186.2 keV cuya probabilidad de emisión es de 3.64 %. En este trabajo no se utilizó el mencionado fotopico dado que posee energía de emisión muy próxima al fotopico de energía de 185.7 keV del ^{235}U – radionucleido natural – cuya probabilidad de emisión es de 57.0 % (IAEA 2017). Debido a esta superposición de emisiones es que se utilizan los fotopicos de emisión de

sus productos de decaimiento de vida media corta – con los cuales se puede asumir que está en equilibrio luego de las 4 semanas de almacenamiento. Al igual que para el ^{232}Th existen numerosos fotopicos posibles de ser utilizados. Para este trabajo se seleccionó para detectar y analizar el ^{226}Ra el fotopico del ^{214}Bi de energía 609.3 keV, debido a que posee elevada probabilidad de emisión (45.5 %) (IAEA 2017). El mismo fotopico es utilizado en diversos trabajos (Agbalagba et al. 2012). Como ejemplo de otros posibles fotopicos a ser utilizados existen trabajos que cuantifican ^{226}Ra a través del fotopico de energía 351.9 keV del ^{214}Pb (Kovac et al. 2013), a través de los fotopicos 295.2 keV y 351.9 keV de ^{214}Pb , y 609.3 keV de ^{214}Bi (Al-Hamarneh et al 2009), entre otros.

Para determinar la importancia de los efectos de suma por coincidencia se evaluó una muestra de arena negra de Aguas Dulces a través de varios fotopicos corroborando que los radionucleidos de período de semidesintegración corto están en equilibrio secular y que los efectos de suma por coincidencia no son un aporte significativo.

La concentración de actividad de los distintos radionucleidos se calculó a partir del área neta de los fotopicos mencionados brindada por el software GammaVision, y utilizando la ecuación 6.

$$A = \frac{C}{\varepsilon.t.m} \quad \text{Ecuación 6}$$

Donde: A = concentración de actividad en Bq.kg^{-1}

C = área neta del fotopico en cuentas (área neta – Background)

ε = Eficiencia para el fotopico

t = tiempo de medida en segundos

m = masa de la muestra en kg

La eficiencia para el fotopico se calculó utilizando los estándares de la IAEA antes mencionados utilizando los mismos fotopicos y rango de energía (en el sistema “Region of interest”, (ROI)) que para la muestra y la relación cuentas por segundo en el fotopico y desintegraciones por segundo del estándar.

El error asociado a la determinación, se calculó mediante la propagación de los errores de acuerdo a la ecuación 7.

$$\sigma_A = A \sqrt{\left[\frac{\sigma_C}{C}\right]^2 + \left[\frac{\sigma_\varepsilon}{\varepsilon}\right]^2 + \left[\frac{\sigma_t}{t}\right]^2 + \left[\frac{\sigma_m}{m}\right]^2} \quad \text{Ecuación 7}$$

Donde: A = concentración de actividad en Bq.kg⁻¹

σ_C = error en el área neta del fotopico en cuentas (área neta – Background)

C = área neta del fotopico en cuentas (área neta – Background)

σ_ε = error en la eficiencia para el fotopico

ε = Eficiencia para el fotopico

σ_t = error en la determinación tiempo de medida en segundos

t = tiempo de medida en segundos

σ_m = error en la determinación de la masa en kg

m = masa de la muestra en kg

El límite de detección en cuentas fue calculado según lo reportado por Currie, de acuerdo a la ecuación 8, ecuación de referencia en esta temática. (Currie 1968, Turner et al. 2012).

$$L_D = 2.71 + 4.65\sqrt{\mu_B} \quad \text{Ecuación 8}$$

Donde $\sqrt{\mu_B}$ corresponde al error en el área neta del fotopico de interés en la determinación del background.

Para su determinación se considera la probabilidad de falsos positivos (α) igual a la probabilidad de falsos negativos (β), ambas 0.05.

El límite de detección en actividad (denominado en literatura actividad mínima detectable (MDA)) fue calculado a partir del límite de detección en cuentas (L_D), la eficiencia de detección y el tiempo de conteo por muestra.

3.II.3. Evaluación de zonas potenciales de riesgo radiológico por la presencia de ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K en arena de Playa

Para evaluar el riesgo radiológico asociado a la exposición a la radiación gamma de los radionucleidos presentes en las playas de los distintos balnearios se utilizaron los índices recomendados por el Comité Científico de Naciones Unidas sobre los Efectos de la Radiación Atómica - “United National Scientific Committee on the Effects on Atomic Radiation” UNSCEAR- (UNSCEAR 2008) que se detallan a continuación.

El primer índice evaluado fue la Tasa de dosis absorbida en aire a 1 metro de la superficie (en inglés “Absorbed dose rate”) (D) ya que existe una correlación directa entre la concentración de los radionucleidos naturales presentes en la corteza terrestre y la tasa de dosis de radiación gamma absorbida. Esta dosis corresponde a una posición sobre cielo abierto, no en una vivienda donde las paredes y techos pueden contribuir a la misma. La Tasa de dosis absorbida se puede calcular utilizando las concentraciones de actividad en suelo o arena en Bq.kg^{-1} utilizando la relación que se muestra en la ecuación 9 (Beck 1972, Chang et al. 2008).

$$D(\text{nGy.h}^{-1}) = (0,462A_{Ra} + 0,604A_{Th} + 0,0417A_K) \quad \text{Ecuación 9}$$

donde:

A_{Ra} = Concentración de actividad de ^{226}Ra en suelo o arena en Bq.kg^{-1}

A_{Th} = Concentración de actividad de ^{232}Th en suelo o arena en Bq.kg^{-1}

A_K = Concentración de actividad de ^{40}K en suelo o arena en Bq.kg^{-1}

Los coeficientes corresponden a los coeficientes de dosis en nGy.h^{-1} por Bq.kg^{-1} reportados por UNSCEAR (UNSCEAR 2008).

El segundo índice evaluado fue la Dosis equivalente efectiva anual (en inglés “Annual effective dose equivalent”) (AEDE) debida a radionucleidos presentes en la corteza terrestre emisores gamma por exposición al aire libre. Dicho índice se calculó utilizando la Tasa de dosis absorbida calculada anteriormente, el coeficiente de conversión entre tasa de dosis absorbida en aire y dosis efectiva (para adultos $7 \times 10^{-4} \mu\text{Sv.Gy}^{-1}$) reportado por UNSCEAR (UNSCEAR 2008) y el

tiempo que los individuos permanecen en la zona, medido por el factor de ocupación, de acuerdo a la siguiente ecuación 10.

$$AEDE(\mu Sv. año^{-1}) = D(nGy. h^{-1}). f. 7 \times 10^{-4} \mu Sv. Gy^{-1} \quad \text{Ecuación 10}$$

Donde:

D = Tasa de dosis absorbida en nGy.h⁻¹

f = factor de ocupación en h.año⁻¹

Además se evaluó la actividad equivalente en Radio (en inglés Radium equivalent activity) (Ra_{eq}), índice que intenta minimizar la no uniforme distribución de los radionucleidos naturales en las muestras de suelo y/o arena (Beretka y Mathew 1985). Para ello se considera que una concentración de actividad de 370 Bq.kg⁻¹ de ²²⁶Ra, produce la misma tasa de dosis de radiación gamma que una concentración de actividad de 259 Bq.kg⁻¹ de ²³²Th y que una concentración de actividad de 4810 Bq.kg⁻¹ de ⁴⁰K. La actividad específica de Radio se calcula de acuerdo a la ecuación 11.

$$Ra_{eq}(Bq.kg^{-1}) = A_{Ra} + 1,43A_{Th} + 0,0077A_K \quad \text{Ecuación 11}$$

Donde:

A_{Ra} = concentración de actividad de ²²⁶Ra en Bq.kg⁻¹

A_{Th} = concentración de actividad de ²³²Th en Bq.kg⁻¹

A_K = concentración de actividad de ⁴⁰K en Bq.kg⁻¹

Finalmente se evaluó el índice de riesgo externo (en inglés “External hazard index”) (Hex) de acuerdo a la ecuación 12. El mencionado índice se basa en la misma consideración.

$$H_{ex} = \left(\frac{A_{Ra}}{370}\right) + \left(\frac{A_{Th}}{259}\right) + \left(\frac{A_K}{4810}\right) \quad \text{Ecuación 12}$$

Donde:

A_{Ra} = concentración de actividad de ²²⁶Ra en Bq.kg⁻¹

A_{Th} = concentración de actividad de ²³²Th en Bq.kg⁻¹

A_K = concentración de actividad de ⁴⁰K en Bq.kg⁻¹

3.III. Evaluación del área Barra de Valizas – Aguas Dulces

El área de estudio denominada Barra de Valizas – Aguas Dulces se delimitó entre el Arroyo Valizas y el Balneario Aguas Dulces a lo largo de la línea de costa e inmediatamente paralela a la Ruta 10 “Juan Díaz de Solís” de acuerdo al mapa que se muestra en la Figura 11, ocupando una superficie total de 20.3 km². Esta selección de área de evaluación se realizó considerando los resultados obtenidos en el muestreo de la costa del Departamento de Rocha (3.II.1), junto a las características geográficas, geológicas y ecológicas descritas en los apartados 1.II y 1.III. Para su evaluación se realizaron muestreos y determinaciones de diferentes compartimentos – suelo, arena y agua superficial y subterránea - como se detalla a continuación.

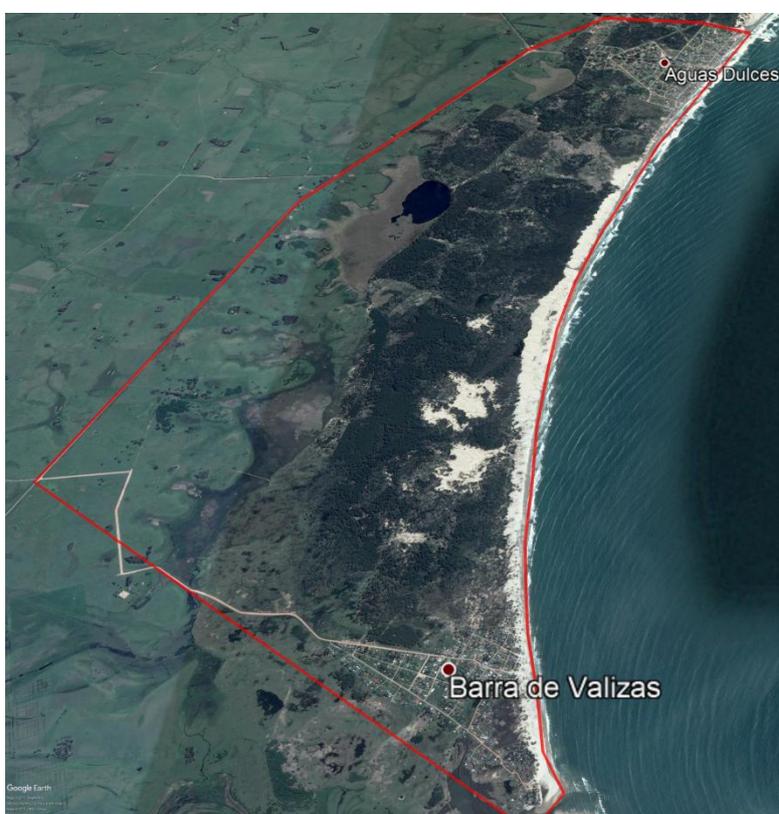


Figura 11: Delimitación geográfica del área de estudio Barra de Valizas – Aguas Dulces.

3.III.1. Muestreo de arena, suelo, agua superficial y subterránea del área Barra de Valizas – Aguas Dulces

Para caracterizar la zona de Barra de Valizas – Aguas Dulces (zona identificada como de mayor riesgo radiológico) se realizó un muestreo aleatorio de arena de playa, agua subterránea - correspondiente a pozos (cachimbas o perforaciones) - y de suelo y arena de las proximidades de las mismas. Los muestreos fueron realizados en otoño y primavera con el fin de determinar si existe estacionalidad. Se eligieron esas estaciones, ya que se desea evaluar la presencia de los mencionados radionucleidos en agua, y en verano los pozos y cachimbas de la zona poseen mayor uso por el turismo y por lo tanto mayor renovación del agua. No se realizaron muestreos en invierno ya que aumentan las precipitaciones aportando agua pluvial a los pozos y cachimbas alterando la concentración de radionucleidos.

Asimismo se realizó un muestreo por conveniencia de la Laguna Clotilde Briozzo; dicho sitio de muestreo fue incorporado por varias razones. En primer lugar la Laguna se encuentra en el sitio RAMSAR 290. Además se encuentra localizada entre las localidades de Barra de Valizas y Aguas Dulces, en el padrón 1645, padrón en el cual ANCAP y DINAMIGE realizaron los estudios evaluatorios de los yacimientos de arenas negras de la zona (ANCAP 1972, Soares de Lima et al 2002, Ferrando et al. 2003). Por otra parte, la Laguna Clotilde Briozzo es una laguna poco intervenida por el ser humano, y aún no se ha determinado un destino definitivo para la misma y sus alrededores (extracción de minerales, explotación ganadera, explotación forestal, destino turístico, etc.). Todo ello hace que sea un área de interés para estudios ambientales en general y de contaminación radiactiva en particular. Desde el punto de vista de la contaminación radiactiva natural es además un área que se puede utilizar como línea de base para evaluar impactos posteriores de actividad humana en el área y extrapolable a otras áreas próximas de geología similar. Desde el punto de vista del destino de la misma, sea éste cualquiera de los expuestos u otros, es útil conocer los niveles de línea de base de concentración de actividad y la distribución de radionucleidos en los distintos compartimentos, para tomar decisiones y para realizar recomendaciones. En la Figura 12 se muestran fotografías de los muestreos realizados.



Figura 12: Fotografías de muestreo de suelo de la Laguna Clotilde Briozzo

Las muestras de arena de playa se tomaron con muestreador tipo taladro de 0 a 20 cm de profundidad y a 3 metros de la línea de costa y distanciadas 100 - 500 m entre ellas, hasta obtener una masa aproximada de 2 kilos por muestra. Las muestras fueron empacadas en bolsas de polipropileno, identificadas y georeferenciadas hasta su transporte al Laboratorio. En las Figuras 13 y 14 se muestran fotografías de los muestreos realizados.



Figura 13: Fotografías de los muestreos de arena realizados en Playa Barra de Valizas



Figura 14: Fotografías de los muestreos de arena realizados en Playa Aguas Dulces

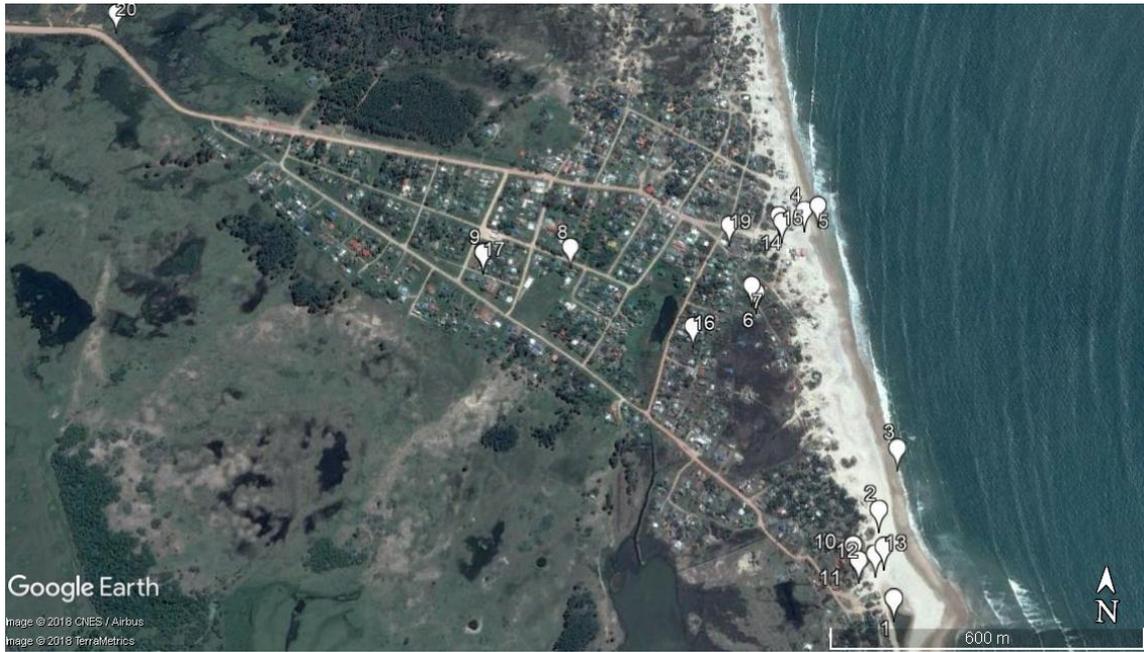
Para realizar el muestreo de los suelos se realizó un cuarteo de la zona en cuadrículas de 100 m por 100 m, sorteando al azar los puntos de muestreo. El muestreo se realizó a una

profundidad de 0 a 20 cm de la superficie y utilizando el mismo muestreador mencionado anteriormente, para ello se retiró la vegetación presente y luego se realizó el muestreo. La profundidad a la cual se tomaron las muestras se seleccionó utilizando el criterio recomendado por IAEA para evaluación de factores de transferencia de radionucleidos del suelo a la vegetación (IAEA 2009). En la Figura 15 se indica como ejemplo el cuarteo realizado para Barra de Valizas.

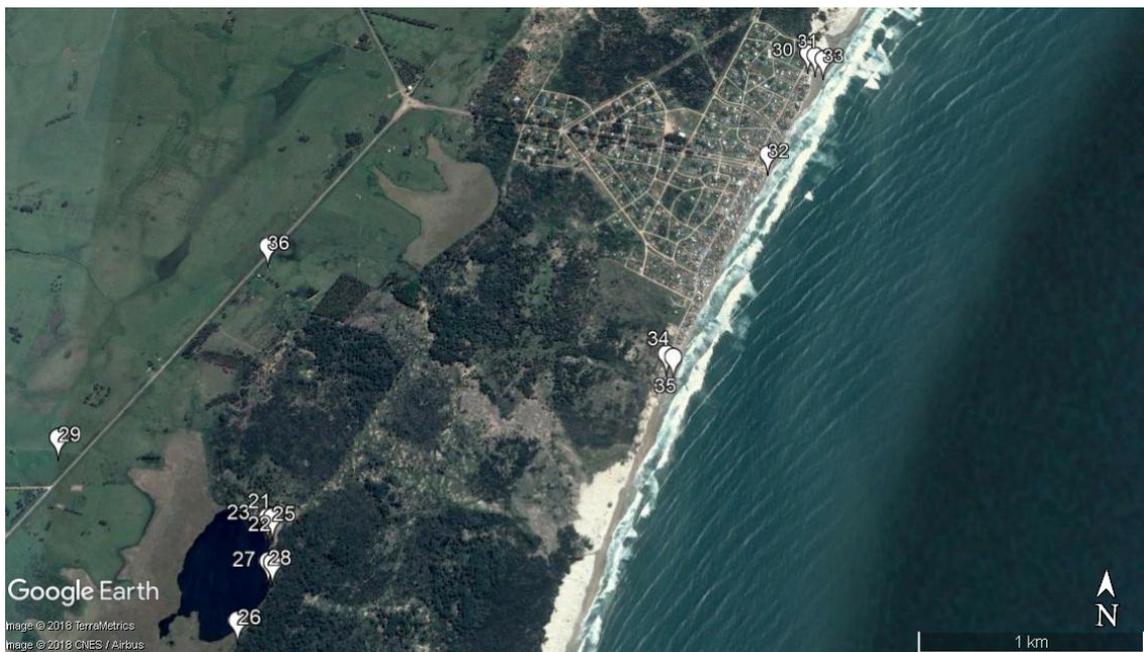


Figura 15: Cuarteo realizado para el muestreo de suelo del Balneario Barra de Valizas

En la Figura 16 se indican los puntos de muestreo de arena y suelo de la zona Barra de Valizas – Aguas Dulces y en la Tabla 7 se resumen las coordenadas geográficas de los mismos, así como la estación en la cual fueron realizados.



a



b

Figura 16: Lugares de muestreo de arena y suelo en el área Barra de Valizas – Aguas Dulces, a) Balneario Barra de Valizas, b) Balneario Aguas Dulces y Laguna de Briozzo

Nº muestra	Latitud (S)	Longitud (O)	Estación
1 – Valizas	34°20'33.66"	53°47'19.74"	Otoño
2 – Valizas	34°20'28.20"	53°47'20.64"	Otoño
3 – Valizas	34°20'24.24"	53°47'19.02"	Otoño
4 – Valizas	34°20'8.16"	53°47'25.92"	Otoño
5 – Valizas	34°20'7.80"	53°47'24.78"	Otoño
6 – Valizas	34°20'14.10"	53°47'29.94"	Otoño
7 – Valizas	34°20'13.62"	53°47'30.30"	Otoño
8 – Valizas	34°20'11.34"	53°47'45.06"	Otoño
9 – Valizas	34°20'11.88"	53°47'52.20"	Otoño
10 – Valizas	34°20'30.48"	53°47'22.68"	Otoño
11 – Valizas	34°20'31.41"	53°47'22.30"	Primavera- Verano
12 – Valizas	34°20'30.98"	53°47'21.02"	Primavera- Verano
13 – Valizas	34°20'30.51"	53°47'20.35"	Primavera- Verano
14 – Valizas	34°20'8.60"	53°47'28.03"	Primavera- Verano
15 – Valizas	34°20'9.04"	53°47'27.79"	Primavera- Verano
16 – Valizas	34°20'16.58"	53°47'35.03"	Primavera- Verano
17 – Valizas	34°20'11.92"	53°47'52.16"	Primavera- Verano
18 – Valizas	34°17'26.30"	53°47'26.90"	Primavera- Verano
19 – Valizas	34°20'9.40"	53°47'32.10"	Primavera- Verano
20 – Valizas	34°19'54.83"	53°48'25.04"	Primavera- Verano
21 – Briozzo	34°17'35.87"	53°48'10.45"	Otoño
22 – Briozzo	34°17'35.10"	53°48'11.10"	Otoño
23 – Briozzo	34°17'34.91"	53°48'11.31"	Primavera- Verano
24 – Briozzo	34°18'4.97"	53°48'26.46"	Primavera- Verano
25 – Briozzo	34°17'35.12"	53°48'10.25"	Primavera- Verano
26 – Briozzo	34°17'49.95"	53°48'14.52"	Primavera- Verano
27 – Briozzo	34°17'41.64"	53°48'9.44"	Primavera- Verano
28 – Briozzo	34°17'41.45"	53°48'10.22"	Primavera- Verano
29 – Briozzo	34°17'24.46"	53°48'50.47"	Primavera- Verano
30 – A. Dulces	34°16'17.11"	53°46'33.37"	Primavera- Verano
31 – A. Dulces	34°16'17.54"	53°46'31.95"	Primavera- Verano
32 – A. Dulces	34°16'35.15"	53°46'41.52"	Primavera- Verano
33 – A. Dulces	34°16'18.13"	53°46'30.37"	Primavera- Verano
34 – A. Dulces	34°17'8.49"	53°47'0.57"	Primavera- Verano

35 – A. Dulces	34°17'8.99"	53°46'59.29"	Primavera- Verano
36– A. Dulces	34°16'53.29"	53°48'16.28"	Primavera- Verano

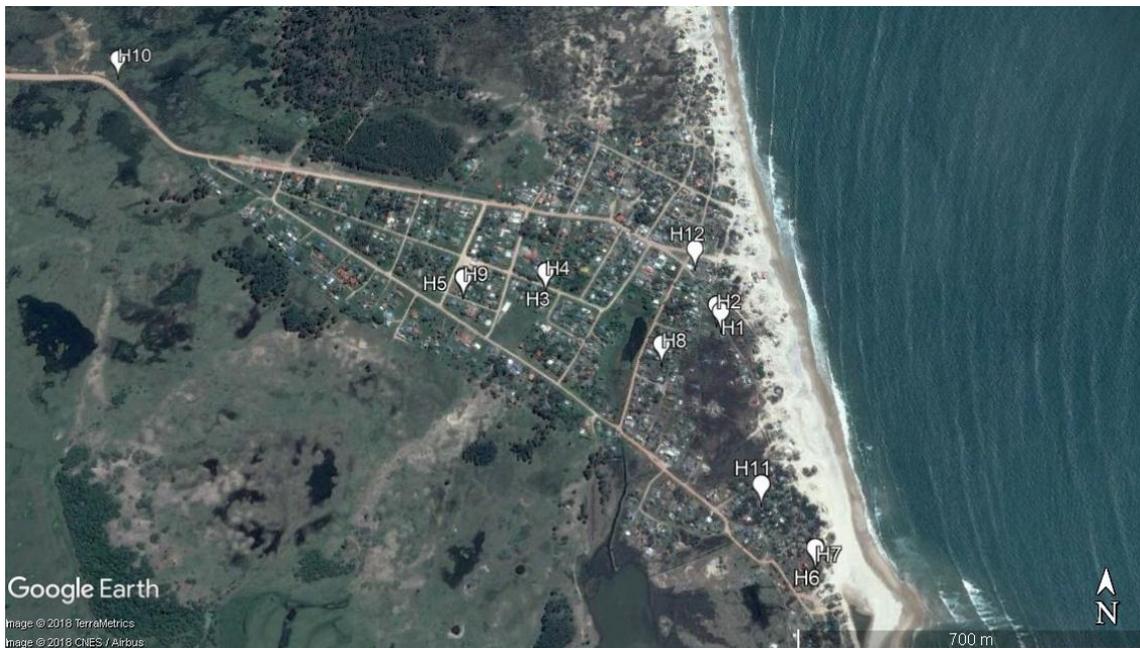
Tabla 7: Coordenadas geográficas y estacionalidad de los puntos de muestreo de arena y suelo en el área Barra de Valizas – Aguas Dulces

Las muestras de agua – tanto de cachimba/pozo como de la laguna – fueron almacenadas en contenedores de polietilentereftalato (PET) previamente lavados y acidificados con ácido nítrico concentrado. Cada muestra consiste en 5 litros de agua. Las muestras fueron tomadas por duplicado directamente con los recipientes en el caso del agua de la Laguna y mediante baldin de policloruro de vinilo (PVC) en el caso de las muestras de agua de pozo. Las muestras fueron identificadas y georeferenciadas para su transporte al Laboratorio. En la Figura 17 se muestran fotografías de los muestreos de agua de pozo y de la Laguna Clotilde Briozzo.

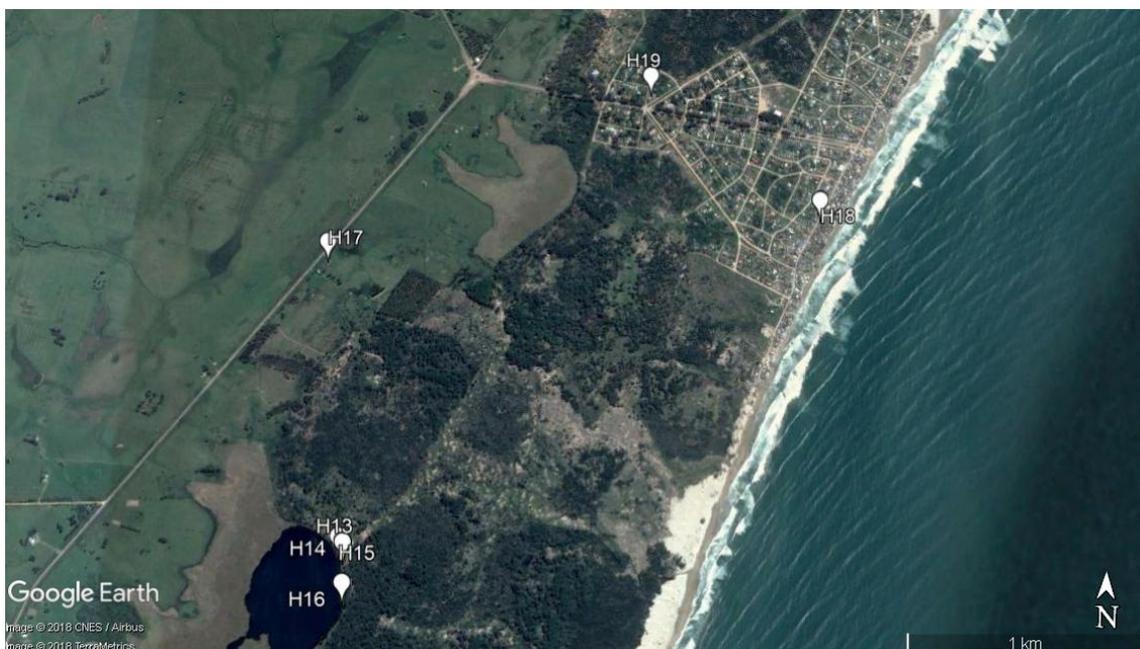


Figura 17: Fotografía de muestreos de agua en el área Barra de Valizas – Aguas Dulces

En la Figura 18 se muestran los puntos de muestreo de agua de cachimba/pozo y superficial de la zona Barra de Valizas – Aguas Dulces y en la Tabla 8 se resumen las coordenadas geográficas de los mismos, así como la estación de muestreo.



a



b

Figura 18: Lugares de muestreo de agua en el área Barra de Valizas – Aguas Dulces, a) Balneario Barra de Valizas, b) Balneario Aguas Dulces y Laguna de Briozzo

Nº muestra	Latitud (S)	Longitud (O)	Estación
H1 – Valizas	34°20'14.10"	53°47'29.94"	Otoño
H2 – Valizas	34°20'13.62"	53°47'30.30"	Otoño
H3 – Valizas	34°20'11.34"	53°47'45.06"	Otoño
H4 – Valizas	34°20'11.34"	53°47'45.06"	Otoño
H5 – Valizas	34°20'11.88"	53°47'52.20"	Otoño
H6 – Valizas	34°20'30.48"	53°47'22.68"	Otoño
H7 – Valizas	34°20'30.46"	53°47'22.67"	Primavera- Verano
H8 – Valizas	34°20'16.58"	53°47'35.03"	Primavera- Verano
H9 – Valizas	34°20'11.92"	53°47'52.16"	Primavera- Verano
H10 – Valizas	34°19'54.83"	53°48'25.04"	Primavera- Verano
H11 – Valizas	34°20'26.30"	53°47'26.90"	Primavera- Verano
H12 – Valizas	34°20'9.40"	53°47'32.10"	Primavera- Verano
H13 – Briozzo	34°17'35.87"	53°48'10.44"	Otoño
H14 – Briozzo	34°17'35.10"	53°48'11.10"	Otoño
H15 – Briozzo	34°17'35.12"	53°48'11.23"	Primavera- Verano
H16 – Briozzo	34°17'41.37"	53°48'10.13"	Primavera- Verano
H17 – A. Dulces	34°16'53.29"	53°48'16.28"	Primavera- Verano
H18 – A. Dulces	34°16'44.84"	53°46'50.62"	Primavera- Verano
H19 – A. Dulces	34°16'27.02"	53°47'21.30"	Primavera- Verano

Tabla 8: Coordenadas geográficas y estacionalidad de los puntos de muestreo de agua en el área Barra de Valizas – Aguas Dulces

3.III.2. Preparación y caracterizaciones fisicoquímicas de las muestras del área Barra de Valizas – Aguas Dulces

3.III.2.a. Preparación y caracterizaciones fisicoquímicas de las muestras de arena y suelo

Las muestras de arena y suelo fueron secadas en estufa (Labotecgroup) a 60°C hasta alcanzar una masa constante, luego fueron tamizadas con tamiz de malla de 2 mm, de manera de separar restos de vegetación, rocas y otros residuos presentes principalmente en las muestras de suelo.

Las muestras secas fueron caracterizadas en su contenido de materia orgánica, carbonatos y composición. Para la evaluación del contenido máximo de materia orgánica fue utilizado el método de pérdida de masa reportado por Heiri et al. 2001, en el cual 2 gramos de muestra seca se calientan a 550°C durante 4 horas (se utilizó una mufla ATEC modelo HFAD5) y se calcula el porcentaje de pérdida de masa según la ecuación 13.

$$LOM = \frac{(m_i - m_{550})}{m_i} * 100 \quad \text{Ecuación 13}$$

donde: LOM = pérdida de materia orgánica

m_i = masa muestra seca

m_{550} = masa muestra seca luego de proceso a 550°C

Las mencionadas pérdidas de masa se pueden deber a la materia orgánica componente del suelo así como también a pérdidas de agua componentes de los mismos, razón por la cual podemos afirmar que el cálculo así determinado es el máximo contenido de materia orgánica.

El contenido de carbonatos fue evaluado nuevamente por el método de pérdida de masa, donde la muestra previamente calcinada para evaluar materia orgánica se calienta a 900°C durante 2 horas (mufla ATEC modelo HFAD5) y se calcula el porcentaje de carbonatos de acuerdo a la siguiente ecuación (Heiri et al. 2001).

$$\% CO_3 = \frac{(m_{550} - m_{900})}{m_i} * 100 \quad \text{Ecuación 14}$$

donde: m_i = masa muestra seca

m_{550} = masa muestra seca luego de proceso a 550°C

m_{900} = masa muestra seca luego de proceso a 900°C

Se estudió la distribución de tamaño de partículas en las muestras; para ello 100 gramos de muestra fueron separadas utilizando un tamizador de campo y un set de cuatro tamices: 021OPN (50 µm), 041OPN (100 µm), 090PN (200 µm), y 015 OPN (315 µm), como se aprecia en la Figura 19.



Figura 19: Ejemplo de análisis de distribución de tamaño de partículas en una muestra de Barra de Valizas

Las muestras previamente molidas en molino de ágata fueron caracterizadas por Difracción de Rayos X de polvo (XRD) utilizando un difractómetro PANalytical EMPYREAN con tubo de rayos X con ánodo de cobre en geometría Bragg Brentano. Las muestras fueron analizadas con un barrido en 2θ de 5 a 70°. En la Figura 20 se muestra un ejemplo de procesamiento de muestra y análisis por XRD.



Figura 20: Ejemplo de procesamiento de muestra y análisis por XRD.

3.III.2.b. Acondicionamiento y caracterizaciones fisicoquímicas de las muestras de agua

Las muestras de agua fueron acidificadas para su conservación con HNO₃ concentrado hasta alcanzar un pH entre 1 y 2, de manera de evitar que los radionucleidos se adsorban en las paredes de los contenedores. Previamente a su acidificación el pH fue medido utilizando un pHmetro Martini Instruments Mi 180 BenchMeter.

3.III.3. Evaluación de radionucleidos presentes en el compartimento arena – suelo del área de estudio Barra de Valizas – Aguas Dulces

3.III.3.a Cuantificación de los radionucleidos ²³²Th, ²²⁶Ra y ⁴⁰K por espectrometría gamma

Una vez acondicionadas las muestras fueron procesadas de igual manera que lo que se describió en el punto 3.II.2 y analizadas por espectrometría gamma utilizando el sistema de espectrometría, patrones y condiciones antes descrito (punto 3.II.2).

3.III.3.b. Validación de la geometría 100 mL para cuantificación de los radionucleidos ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²³²Th y ⁴⁰K

Existen al menos dos razones que justifican la necesidad de utilizar una geometría de menor volumen de muestra que la geometría Marinelli antes utilizada. La primera es la necesidad de cuantificar ²¹⁰Pb y ²³⁸U para evaluar equilibrios y desequilibrio de la serie de ²³⁸U. Dado que las energías de emisión de los fotopicos del ²¹⁰Pb y del ²³⁴Th (para evaluar ²³⁸U) son bajas, la probabilidad de autoabsorción de las mismas por las muestras es mayor y existe gran variabilidad en función de la matriz de las muestras. La segunda razón es que la presencia de ¹³⁷Cs en las muestras de suelo y sedimento y el no contar en el laboratorio con un estándar de ¹³⁷Cs de similar matriz en cantidad suficiente para realizar la cuantificación en la geometría Marinelli. Existe además una ventaja: en caso de validación de la mencionada geometría se puede cuantificar los distintos radionucleidos en muestras donde no existe la posibilidad de obtener un kilo de las mismas.

Debido a la difusión del gas radón a través de las paredes de los contenedores, es necesario validar la geometría cilíndrica de 100 mL, ya que el utilizado no es un contenedor diseñado para ello. Para validar la geometría de 100 mL un patrón de la IAEA de sedimento del Mar Irlandés (IAEA 385) fue analizado por espectrometría gamma, utilizando el sistema antes descrito, y los resultados obtenidos fueron comparados con los reportados en el certificado emitido por la IAEA (IAEA 2013).

Asimismo, los radionucleidos ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K analizados en 3.III.3.a fueron evaluados utilizando el mismo sistema de espectrometría gamma, los mismos fotopicos y estándares ya descritos pero en la geometría cilíndrica de 100mL, con el fin de verificar homogeneidad de las muestras.

3.III.3.c Cuantificación de los radionucleido ^{238}U y ^{210}Pb

Las muestras anteriormente secas y tamizadas de suelo y arena del área Barra de Valizas – Aguas Dulces fueron colocadas en recipiente de geometría cilíndrica de 100 mL, selladas y almacenadas 4 semanas. Los radionucleidos ^{238}U y ^{210}Pb fueron analizados por espectrometría gamma utilizando el mismo sistema antes descrito.

El ^{238}U es emisor alfa principalmente, debido a ello se seleccionó para su cuantificación por espectrometría gamma el fotopico de 63.3 keV de su producto de decaimiento ^{234}Th ($t_{1/2}$ 24.10 días), de probabilidad de emisión 3.7 % (IAEA 2017). El mismo radionucleido ^{234}Th posee además un fotopico doble 92.38 y 92.80 keV, de probabilidad de emisión 2.13 y 2.10 respectivamente (IAEA 2017). El mismo no fue utilizado debido a que en algunas muestras (las de mayor actividad) el sistema de espectrometría utilizado permite resolverlos, pero no lo permite en las de baja actividad.

El ^{210}Pb se cuantificó a través de su propio fotopico de emisión gamma de 46.5 keV, cuya probabilidad de emisión es de 4.25 % (IAEA 2017).

La cuantificación de los tres radionucleidos (^{238}U , ^{226}Ra y ^{210}Pb) permite evaluar la existencia de equilibrios y desequilibrios en los distintos compartimentos del área estudiada, según lo descrito en 1.IV.

La calibración en eficiencia fue realizada utilizando estándares certificados del “Organismo Internacional de Energía Atómica” (IAEA), IAEA RGU-1 y IAEA 375 (sedimento del mar Irlandés), en igual geometría que las muestras. Las muestras, la radiación de fondo y los estándares fueron medidos durante 300000 segundos cada uno.

La selección de la mencionada geometría se debe a que ambos radionucleidos poseen emisiones de energías bajas, por lo tanto la absorción de la radiación gamma por la propia muestra es considerable. Esto hace necesaria la corrección por autoabsorción de la muestra. Para ello fue utilizada una fuente puntual de ^{241}Am (Eckert & Ziegler), en un dispositivo colimador según se muestra en la Figura 21 para las muestras y estándares IAEA RGU-1 y IAEA 375.



Figura 21: Corrección por autoabsorción: geometría de 100 mL, dispositivo colimador y fuente de ^{241}Am

Las muestras y los estándares fueron medidos durante 3600 segundos y el área del fotopico de 59.5 keV del ^{241}Am (IAEA 2017) fue determinada utilizando el software GammaVision y el factor de corrección por autoabsorción calculado de acuerdo a la ecuación 15 (Cutshall et al. 1983). La concentración de actividad corregida por autoabsorción de ^{238}U y ^{210}Pb fue calculada utilizando la ecuación 16.

$$f_{abs} = \frac{\ln\left(\frac{T_M}{T_I}\right)}{\frac{T_M}{T_I} - 1} \quad \text{Ecuación 15}$$

Donde f_{abs} = factor de corrección por autoabsorción

T_M = área neta fotopico atenuado por autoabsorción (área neta – background)

T_I = área neta fotopico no atenuado por autoabsorción (área neta – background)

$$A_c = f_{abs} \cdot A \quad \text{Ecuación 16}$$

Donde f_{abs} = factor de corrección por autoabsorción

A_c = Actividad corregida por autoabsorción ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)

A = Actividad determinada ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)

La Actividad determinada (A) de ambos radionucleidos fue calculada de acuerdo a lo descrito en 3.II.2.

La fuente de ^{241}Am fue seleccionada debido a que el fotopico de 59.54 keV (IAEA 2017) posee una energía similar a las analizadas para ^{238}U y ^{210}Pb y por tanto la autoabsorción es similar para los tres radionucleidos.

3.III.3.d. Cuantificación del radionucleido antropogénico ^{137}Cs por espectrometría gamma

El ^{137}Cs – radionucleido artificial- es un emisor beta ($t_{1/2} = 30.08$ años) que está en equilibrio secular con el $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ($t_{1/2} = 2.552$ minutos), el cual es emisor gamma con un fotopico de emisión en 661.7 keV y probabilidad de emisión de 85.10 % (IAEA 2017).

Para su cuantificación se utilizaron los mismos contenedores de geometría cilíndrica de 100 mL, y la cuantificación se realizó en simultáneo a la cuantificación de ^{238}U y ^{210}Pb , antes descrita. Cabe mencionar aquí que, dada la energía de la emisión la cuantificación se puede realizar con la geometría Marinelli previamente descrita pero para ello es necesario contar con cantidad suficiente de un material de referencia de matriz similar, o realizar la calibración con estándares líquidos con las posteriores correcciones, los cuales no se disponen en el Laboratorio. Para la calibración en eficiencia se utilizó el material de referencia IAEA 385, certificado por la IAEA (sedimento del mar Irlandés). Las muestras, el material de referencia y la radiación de fondo (background) fueron medidos 300000 segundos.

3.III.4. Evaluación de radionucleidos presentes en el compartimento agua

Se determinó la actividad alfa y beta total en las muestras de agua como método de screening de acuerdo a lo recomendado por la Organización Mundial de la Salud (OMS) (WHO 2011). La OMS recomienda que se determine en las aguas para consumo la actividad alfa y beta total y en aquellos casos que la actividad alfa y beta total esté por encima de los límites establecidos, realizar mayores determinaciones.

Dado que la actividad alfa y beta total de las muestras está por debajo de los límites recomendados por OMS, como se detalla en la discusión de resultados, desde el punto

de vista de la potabilidad no sería necesario realizar mayores determinaciones, pero es interesante evaluar la transferencia de los distintos radionucleidos entre compartimentos. Para ello se seleccionaron las muestras pertenecientes a la Laguna Clotilde Briozzo para la cuantificación de los radionucleidos ^{226}Ra , ^{228}Ra y ^{210}Pb , con el fin de evaluar transferencia de radionucleidos entre compartimentos.

También es importante conocer la dosis equivalente efectiva por la ingesta de los radionucleidos, aún cuando se espere una dosis menor a $0.1 \text{ mSv}\cdot\text{año}^{-1}$ de acuerdo a los niveles alfa y beta determinados. En el área Barra de Valizas – Aguas Dulces, en general y debido a que existe suministro público de agua potable, las perforaciones privadas ya no se utilizan para consumo, sino sólo en algunos casos para riego de jardines. Dada esta situación para evaluar la dosis equivalente efectiva por la ingesta de agua se seleccionaron las perforaciones públicas, y de ellas se determinó la concentración de actividad de los radionucleidos particulares únicamente en Barra de Valizas, ya que la actividad alfa y beta total del agua del suministro público de Aguas Dulces es menor a los límites de detección, como se detalla en la discusión de resultados.

De los radionucleidos naturales la Organización Mundial de la Salud recomienda una concentración de actividad menor a $0.1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ de los radionucleidos ^{228}Ra , ^{210}Pb y ^{210}Po , menor a $1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{228}Th y menor a $10 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ de ^{238}U y ^{234}U (WHO 2011). Si bien dada la actividad alfa y beta total determinada no es esperable obtener ninguno de los mencionados radionucleidos en concentraciones superiores a los recomendados por la OMS, se seleccionaron especialmente ^{228}Ra y ^{210}Pb para su cuantificación. El ^{210}Po si bien es especialmente relevante dada su actividad específica, es objeto de otra tesis de doctorado en el grupo por lo que no se determinó en este trabajo.

A continuación se detallan los métodos experimentales llevados a cabo para ambas determinaciones en agua.

3.III.4.a Preparación de muestras y determinación de la actividad alfa y beta total

Para la cuantificación de la actividad alfa y beta total las muestras de agua previamente acidificadas con ácido nítrico y filtradas fueron concentradas para determinar su actividad alfa y beta total. Para ello 1 litro de agua fue filtrado y evaporado utilizando una plancha calefactora IKA C-MAG HS7 hasta obtener un volumen total de 10 mL. Luego la muestra concentrada fue trasvasada y evaporada en una plancheta de acero inoxidable de 2” de diámetro de manera de obtener un depósito homogéneo. Todas las muestras fueron analizadas por duplicado. Las muestras fueron mantenidas en desecador hasta su conteo (APHA 1998). Un blanco con agua tipo II (ASTM II)-obtenido de un ultra purificador Thermo Smart2Pure - fue procesado en las mismas condiciones.

La actividad alfa y beta total de las muestras y el blanco fue cuantificada mediante el contador de gas proporcional alfa y beta total de bajo background Canberra LB4200, descrito en 3.I.3. Cada muestra fue medida 10 veces durante 600 segundos, mientras que el blanco fue medido 15 veces durante 2700 segundos. El contador fue calibrado utilizando estándares de ^{241}Am y ^{36}Cl fabricados y calibrados por Eckert & Ziegler, según lo descrito en 3.I.3.

3.III.4.b. Preparación de muestras y cuantificación de los radionucleidos ^{226}Ra , ^{228}Ra y ^{210}Pb

Para la cuantificación de los mismos se realizó una separación radioquímica adaptando el método reportado por Olivera (Moreira 1993; Oliveira 1993; Olivera et al. 2001). Previo a la separación radioquímica se evaporaron 5 litros de muestra acondicionada con ácido nítrico concentrado y filtrada, utilizando plancha calefactora IKA C-MAG HS7 hasta obtener un 1 litro de muestra de agua concentrada.

Todas las muestras se analizaron por duplicado. Asimismo se realizó un blanco con agua tipo I (ASTM I) (purificador Thermo Smart2Pure) y soluciones estándares con estándares líquidos de ^{226}Ra , ^{228}Ra y ^{210}Pb (suministrados por el “National Institute of Standards and Technology” (NIST)) y agua tipo I (ASTM I) para calcular las eficiencias de detección.

Las muestras concentradas fueron sometidas al proceso de separación radioquímica en cadena, el cual implica precipitación selectiva de los cationes utilizando sales poco solubles. En este trabajo fue utilizada la precipitación de cromato de plomo (PbCrO_4) y la co-precipitación de sulfato de bario y radio (Ba(Ra)SO_4), como se detalla a continuación.

1. A cada muestra se adicionan 7 mL de ácido cítrico 2 M, 1 mL de solución de Pb^{+2} (denominada “carrier” de Pb), 1 mL de solución de Ba^{+2} (denominada “carrier” de Ba) y 10 gotas de indicador rojo de metilo, bajo agitación en agitador magnético IKA C-MAG HS7. Los “carriers” son adicionados con el objetivo de aumentar las concentraciones de ambos cationes en la solución para lograr alcanzar el producto de solubilidad posibilitando la precipitación como sulfatos (Ba(Ra)SO_4 y PbSO_4), mientras que el ácido cítrico es utilizado para complejar posibles interferencias como ser Fe^{+3} y Al^{+3} .
2. Se adiciona hidróxido de amonio concentrado hasta viraje del indicador rojo de metilo y se calienta a ebullición.
3. Se adicionan 50 mL de ácido sulfúrico 3 M y se deja en reposo, de manera que el precipitado formado (Ba(Ra)SO_4 y PbSO_4) decante.
4. Se extrae y descarta el sobrenadante, se lava el precipitado con agua tipo I (ASTM I) y se centrifuga 5 minutos a 3000 rpm utilizando una centrífuga Sigma 2-6.
5. Se extrae y descarta el sobrenadante y se lava el precipitado con 30 mL de ácido sulfúrico 0.1 M, este procedimiento se realiza para evitar que los precipitados formados se solubilizan. Se realiza dos veces.
6. Se disuelve el precipitado en baño de agua con 2.0 g de ácido nitrilo triacético (NTA) –Triplex I, 20 mL de agua tipo I (ASTM I), 7 mL de Hidróxido de sodio 6M y 6 gotas de indicador rojo de metilo. Para la disolución del precipitado el pH debe estar entre 12.5 y 13.0. Esta etapa permite la formación de complejos entre Pb^{+2} y Ba^{+2} con NTA, de manera de separarlos luego con una nueva precipitación.
7. Se adiciona a la solución 5 mL de sulfato de amonio 25 mg/mL y ácido acético glacial hasta viraje del indicador, se deja precipitar a 60°C y decantar hasta el día siguiente. De esta manera los isótopos de radio precipitan como Ba(Ra)SO_4 y los de plomo permanecen en solución formando un complejo con NTA.

8. Se centrifuga el precipitado 7.5 minutos a 3000 rpm utilizando una centrífuga Sigma 2-6.
9. Se extrae el sobrenadante y se separa para la determinación de ^{210}Pb , mientras que el precipitado se lava con 20 ml de acetato de sodio 30 %. El precipitado se centrifuga 7.5 minutos a 3000 rpm utilizando una centrífuga Sigma 2-6. Esta operación se realiza dos veces, guardándose los sobrenadantes para la determinación de ^{210}Pb .
10. Para la determinación de ^{226}Ra y ^{228}Ra se disuelve el precipitado con 2.0 g de Ácido etilendiaminotetraacético (EDTA), 20 mL de agua tipo I (ASTM I) y 5 mL de Hidróxido de sodio concentrado en plancha calefactora IKA C-MAG HS7.
11. Se adiciona 5 mL de sulfato de amonio 25 mg/mL y se precipita $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ con ácido acético glacial a pH 4.5-5.0, se anota fecha y hora de precipitación.
12. El precipitado de $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ se filtra a vacío utilizando filtro de fibra de vidrio (B4700 Sterlitech Corporation).
13. Se seca en estufa a 60°C , se determina el rendimiento químico por gravimetría y se guarda en desecador hasta alcanzar el equilibrio secular (21 días) y se cuantifica ^{226}Ra y ^{228}Ra utilizando el contador proporcional alfa y beta total CANBERRA LB4200, antes descrito, durante 24000 segundos.
14. Para la determinación de ^{210}Pb se calienta el sobrenadante a ebullición en plancha calefactora IKA C-MAG HS7 y se adiciona 1 mL de sulfuro de sodio 1 M, para que precipite sulfuro de plomo y se deja decantar hasta el día siguiente.
15. El precipitado se centrifuga 12 minutos a 3000 rpm en centrífuga Sigma 2-6.
16. Se extrae el sobrenadante que se descarta y se lava el precipitado con 20 mL de agua tipo I (ASTM I). Se centrifuga nuevamente 12 minutos a 3000 rpm en centrífuga Sigma 2-6. Este procedimiento se realiza dos veces.
17. Se adicionan 10 mL de agua tipo I (ASTM I), 1.2 mL de ácido nítrico – para lograr la disolución del sulfuro de plomo- y 3 gotas de indicador rojo de metilo, se calienta a ebullición en baño de agua durante 3 horas utilizando una plancha calefactora IKA C-MAG HS7. El catión Pb^{+2} permanecerá en solución mientras que precipitará azufre elemental.

18. El precipitado de azufre elemental se elimina mediante filtrado con papel plegado. Se ajusta el pH de la solución entre 4.5 y 5.0 con acetato de sodio 30 %, para lograr el pH ideal de precipitación de PbCrO_4 .
19. Se calienta la solución a ebullición, se adiciona cromato de sodio 30 % y se mantiene a ebullición por 10 minutos.
20. Una vez fría la solución, el precipitado se filtra a vacío con filtro de fibra de vidrio (B4700 Sterlitech Corporation).
21. Se seca en estufa a 60°C , se determina el rendimiento químico por gravimetría, se guarda en desecador hasta alcanzar el equilibrio secular (10 días) y se cuantifica ^{210}Pb utilizando el contador proporcional alfa y beta total de bajo background CANBERRA LB4200 antes descrito, durante 24000 segundos.

Los precipitados de Ba(Ra)SO_4 para cuantificar ^{226}Ra fueron medidos por conteo alfa total luego de 21 días de depositados, tiempo en el cual la contribución de ^{224}Ra y ^{223}Ra es prácticamente nula y han transcurrido más de 5 períodos de semidesintegración del ^{222}Rn ($t_{1/2} = 3.82$ días) (IAEA 2017), obteniéndose cerca del 95 % del equilibrio secular (Oliveira 1993; Oliveira et al. 2001). Los mismos precipitados, para cuantificar ^{228}Ra , fueron medidos por conteo beta total luego de 21 días de depositados, tiempo necesario para minimizar la contribución de los demás isótopos de radio - como se mencionó anteriormente - y para alcanzar el equilibrio secular entre el ^{228}Ra ($t_{1/2} = 5.75$ años) (IAEA 2017), y el producto de decaimiento ^{228}Ac ($t_{1/2} = 6.15$ horas) (IAEA 2017). Los cálculos de actividad específica se realizaron utilizando las ecuaciones 17 y 18.

$$A_{226\text{Ra}} = \frac{R_n - R_0}{Rq \cdot \varepsilon_{abs} \cdot V [1 + 3(1 - e^{-\lambda t})]} \quad \text{Ecuación 17}$$

Donde: $A_{226\text{Ra}}$ = concentración de actividad de ^{226}Ra en $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$

R_n = cuentas totales de la muestra en cps

R_0 = cuentas totales del background en cps

Rq = rendimiento químico

ε_{abs} = eficiencia de conteo alfa para ^{226}Ra en $\text{cps}\cdot\text{dps}^{-1}$

λ = constante de semidesintegración del ^{222}Rn (0.181 días $^{-1}$)

t = tiempo transcurrido entre la precipitación y la determinación en días

V = volumen de la muestra en litros

Debido a que se mide la actividad alfa total, se están midiendo simultáneamente la actividad alfa del ^{226}Ra y de sus hijos emisores alfa: ^{222}Rn , ^{218}Po y ^{214}Po . Considerando que se alcanza el equilibrio a los 21 días se tiene que:

$$A_{222\text{Rn}} = A_{218\text{Po}} = A_{214\text{Po}}$$

$$A_{222\text{Rn}} = A_{226\text{Ra}} \cdot (1 - e^{-\lambda t})$$

Por lo que la actividad alfa total medida corresponde a:

$$A_{\alpha\text{total}} = A_{226\text{Ra}} + A_{222\text{Rn}} + A_{218\text{Po}} + A_{214\text{Po}} = A_{226\text{Ra}} \cdot (1 + 3(1 - e^{-\lambda t}))$$

La concentración de actividad de ^{228}Ra se calculó de acuerdo a la siguiente ecuación:

$$A_{228\text{Ra}} = \frac{R_n - R_0}{Rq \cdot \varepsilon_{\beta 228\text{Ra}} \cdot V} - \frac{\varepsilon_{\beta 226\text{Ra}} A_{226\text{Ra}}}{\varepsilon_{\beta 228\text{Ra}}} \quad \text{Ecuación 18}$$

Donde: $A_{228\text{Ra}}$ = concentración de actividad de ^{228}Ra en Bq.l^{-1}

R_n = cuentas totales de la muestra en cps

R_0 = cuentas totales del background en cps

Rq = rendimiento químico

$\varepsilon_{\beta 228\text{Ra}}$ = eficiencia de conteo beta en cps.dps^{-1}

$\varepsilon_{\beta 226\text{Ra}}$ = eficiencia de conteo beta en cps.dps^{-1}

$A_{226\text{Ra}}$ = concentración de actividad de ^{226}Ra en Bq.l^{-1}

V = volumen de la muestra en litros

Las eficiencias de conteo son calculadas a partir de disoluciones estándares 0.5 Bq.l^{-1} de ^{226}Ra y 1 Bq.l^{-1} de ^{228}Ra , preparadas a partir de soluciones estándares certificadas por el “National Institute of Standards and Technology” (NIST), sometidas al mismo proceso de separación radioquímica.

Para realizar la determinación es necesario blindar las emisiones beta del ^{228}Ra de baja energía (0.0127 MeV, 30 % probabilidad de emisión, 0.0256 MeV 20 % probabilidad de emisión, 0.0391 MeV 40 % probabilidad de emisión y 0.0395 MeV 10 % probabilidad de emisión) (IAEA 2017); para ello se utiliza un film polimérico (Con-TactBrand adhesivo transparente).

Los precipitados de PbCrO_4 para cuantificar ^{210}Pb fueron medidos por conteo beta total luego de 10 días de depositados, tiempo necesario para alcanzar el equilibrio con su hijo el ^{210}Bi ($t_{1/2}$ 5.01 días y energía máxima de emisión beta 1.17 MeV) (IAEA 2017). Para realizar la determinación es necesario blindar las emisiones beta del ^{210}Pb de baja energía (0.016 MeV, 85 % probabilidad de emisión y 0.06 MeV 15 % probabilidad de emisión) (IAEA 2017); para ello se utiliza un film polimérico (Con-TactBrand adhesivo transparente).

La eficiencia fue calculada a partir de una disolución 1 Bq.l^{-1} de la solución estándar de ^{210}Pb certificada por el “National Institute of Standards and Technology” (NIST), sometida al mismo proceso de separación radioquímica.

Los cálculos de actividad específica se realizaron utilizando la ecuación 19.

$$A_{210_{pb}} = \frac{R_n - R_0}{Rq \cdot \varepsilon \cdot V \cdot (1 - e^{-\lambda t})} \quad \text{Ecuación 19}$$

Donde: $A_{210_{pb}}$ = concentración de actividad de ^{210}Pb en Bq.l^{-1}

R_n = cuentas totales de la muestra en cps

R_0 = cuentas totales del background en cps

Rq = rendimiento químico

ε = eficiencia de conteo beta en cps.dps^{-1}

λ = constante de semidesintegración del ^{210}Bi (0.183 días^{-1})

t = tiempo transcurrido entre la precipitación y la determinación en días

V = volumen de la muestra en litros

3. IV. Distribución de los radionucleidos en el Área Barra de Valizas-Aguas Dulces: transferencia de radionucleidos entre compartimentos: suelo – vegetación

Para evaluar la concentración de actividad de los radionucleidos de las series de ^{238}U , ^{232}Th , así como ^{40}K y ^{137}Cs en vegetación del área de estudio, y su transferencia desde el suelo, se tomaron muestras de carqueja (*Baccharis articulata*) y de suelo en la laguna Clotilde Briozzo. El muestreo se realizó por conveniencia, ya que como se detalló anteriormente la laguna presenta escasa incidencia de la actividad humana. La selección de la especie vegetal se realizó debido a que es una especie abundante en la zona, y la única que de alguna manera es consumida por la población (en infusión). En la Figura 22 se muestran fotografías del muestreo y en la Figura 23 su localización.



Figura 22: Fotografías del muestreo de carqueja (*Baccharis articulata*) en la Laguna Clotilde Briozzo



Figura 23: Localización del muestreo de carqueja (*Baccharis articulata*) en la Laguna Clotilde Briozzo

Para el muestreo de vegetación plantas enteras de carqueja fueron cosechadas en tres puntos de la orilla de la Laguna Clotilde Briozzo, acondicionadas en bolsas de polietileno, etiquetadas y georeferenciadas para ser transportadas al laboratorio.

Las muestras de suelo (donde se encontraban las raíces de las plantas) fueron tomadas, procesadas y analizadas como se describió en 3.III.1, 3.III.2 y 3.III.3. Las muestras fueron tomadas hasta los 20 cm y con las precauciones para incluir la capa de suelo que contenía a las raíces de las plantas (IAEA 2009, 2010).

Las plantas fueron lavadas con agua destilada hasta remover los restos de suelo de las mismas, cortadas en fracciones más pequeñas y secadas hasta masa constante a 60°C en estufa (Labotecgroup). Una vez alcanzada masa constante fueron molidas en Molino de cuchillas (MicroMill Bel-Art Products Scienceware) y almacenadas en recipiente de geometría cilíndrica de 100 mL durante 4 semanas, de manera de alcanzar el equilibrio secular entre el ^{226}Ra y el ^{232}Th y sus productos de decaimiento de vida media corta. Los radionucleidos de las series de ^{238}U , ^{232}Th , así como el ^{40}K y ^{137}Cs fueron analizados como se describió en 3.III.3.

El coeficiente de transferencia suelo – planta fue evaluado según la ecuación 20 (Asaduzzaman et al. 2014; IAEA 2010, 2014)

$$T_F = \frac{\text{Concentración de actividad en planta (Bq.kg}^{-1}\text{) en peso seco}}{\text{Concentración de actividad en suelo (Bq.kg}^{-1}\text{) en peso seco}}$$

Ecuación 20

3.V. Evaluación de riesgo radiológico de la población permanente y turistas (aspectos sociales) del área Barra de Valizas – Aguas Dulces

3.V.1. Riesgo radiológico de irradiación externa debido a la presencia de los radionucleidos naturales en suelo y/o arena

Para evaluar el grado de riesgo radiológico asociado a la exposición a radionucleidos naturales presentes en el suelo que rodea las casas de Barra de Valizas y en la arena de playa y de los alrededores de la Laguna de Briozzo se utilizaron los índices descritos en 3.II.3: Tasa de Dosis Absorbida (D) y Dosis equivalente efectiva anual (AEDE). La Dosis equivalente efectiva anual fue calculada para distintos factores de ocupación de manera de evaluar el riesgo de los habitantes del lugar y de los potenciales turistas. En el caso de los habitantes se consideró un factor de ocupación de 0.2 (1752 horas) de acuerdo a lo recomendado por UNSCEAR (UNSCEAR 2008) y de 0.5 (4380 horas) debido a que la mayoría de la población del Área Barra de Valizas – Aguas Dulces posee hábitos y costumbres diferentes a lo reportado, a saber permanecen en el área más tiempo del reportado y realizan actividades laborales y de ocio al aire libre.

En el caso de los turistas se consideraron turistas de temporada – 2 meses – considerando un factor de ocupación de 0.10 (16 horas al aire libre diarias, 960 horas totales anuales) y quincenales, considerando un factor de ocupación de 0.027 (16 horas al aire libre diarias, 240 horas totales anuales).

3.V.2. Riesgo radiológico de irradiación interna (contaminación) debido a la presencia de los radionucleidos naturales en el agua de consumo

Las actividades alfa y beta total de las muestras de agua se compararon con los límites recomendados por la Organización Mundial de la Salud para agua potable (WHO 2011). Debido a que las concentraciones de los radionucleidos ^{210}Pb , ^{226}Ra y ^{228}Ra encontradas en las muestras de agua de las perforaciones del suministro de agua potable es menor al límite de detección no se calculó la dosis equivalente efectiva por la ingesta de los mismos.

3.V.3. Evaluación de riesgo radiológico debido a los materiales de construcción (aspectos sociales y laborales)

Es importante destacar aquí que no fueron evaluados los materiales de construcción en sí, sino que fue evaluado el potencial riesgo del uso de la arena del lugar como componente de los materiales de construcción. Asimismo es importante señalar que si bien la normativa nacional no permite el uso de la arena de playa con tal fin, es hábito de los pobladores del área su uso. Para ello las concentraciones de actividad de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K determinadas según 3.III.3.a se compararon con los valores de referencia de la normativa europea Directive 2013/59 (Council Directive 2013). Para evaluar el exceso de radiación gamma debido al uso de la arena como material de construcción se utilizaron los índices descritos en 3.II.3.: Actividad equivalente en Radio (Ra_{eq}) e índice de riesgo externo (H_{ex}) (Beretka y .Matthew 1985), utilizando las concentraciones de actividades determinadas.

Además se evaluó el Índice de concentración de actividad (I) recomendado por la normativa europea Directive 2013/59 (Council Directive 2013). El mencionado índice se calcula de acuerdo a la ecuación 21.

$$I = \left(\frac{A_{\text{Ra}}}{300 \text{ Bq.kg}^{-1}} \right) + \left(\frac{A_{\text{Th}}}{200 \text{ Bq.kg}^{-1}} \right) + \left(\frac{A_{\text{K}}}{3000 \text{ Bq.kg}^{-1}} \right) \quad \text{Ecuación 21}$$

Si bien el índice se aplica al material de construcción en sí y no a sus constituyentes el mismo es orientativo del máximo exceso de radiación gamma que puede implicar el uso de la arena como constituyente.

Además en función de las concentraciones de actividad de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K se puede estimar el exceso de irradiación interna debida a la inhalación del gas ^{222}Rn y sus productos de desintegración de vida media corta emanados de los materiales de construcción. Para ello fue calculado el índice de riesgo interno (H_{in}), del inglés “Internal Hazard Index” (Pantelic et al. 2014; UNSCEAR 2000), según la ecuación 22.

$$H_{\text{in}} = \frac{A_{\text{Ra}}}{185 \text{ Bq.kg}^{-1}} + \frac{A_{\text{Th}}}{259 \text{ Bq.kg}^{-1}} + \frac{A_{\text{K}}}{4810 \text{ Bq.kg}^{-1}} \quad \text{Ecuación 22}$$

4. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

4. I. 1. Instalación de la infraestructura necesaria para los trabajos

Se instaló satisfactoriamente – superando diversos escollos – el equipamiento necesario para el desarrollo de los trabajos experimentales de la Tesis.

En la Figura 24 se muestra el sistema de espectrometría gamma con detector de Germanio de alta pureza (HPGe), y en la Figura 25 el sistema contador proporcional alfa y beta total, instalados y utilizados en el desarrollo de la Tesis.



Figura 24: Sistema de espectrometría gamma ORTEC- AMETEK GMX35P4-76-RB con detector de Germanio de alta pureza (HPGe) y su blindaje de plomo



Figura 25: Sistema contador proporcional alfa y beta total de bajo background CANBERRA LB4200

4.I.2. Consideraciones sobre seguridad radiológica

Las fuentes radiactivas utilizadas como estándares en este trabajo se encuentran en la categoría 5 de la norma UY117 (ARNR 2014), es decir su razón de actividad A/D es menor a 0.01, siendo ésta la categoría de menor razón de actividad ($0.01 > A/D \geq$ nivel de exención/D), y por tanto de riesgo radiológico mínimo.

Una vez instalado el Laboratorio se obtuvo la autorización N° 190/0/0 por parte de la Autoridad Reguladora Nacional de Radioprotección (ARNR) con vencimiento 13/7/2020.

4.I.3. Optimización de las condiciones de trabajo

Se optimizaron los parámetros del sistema de espectrometría gamma ORTEC-AMETEK GMX35P4-76-RB ajustando el rango de Energía de trabajo de 0 a 3000 keV y la ganancia tal que se obtienen 0.366 keV/canal. El ruido eléctrico (entre 3 – 10 cps) se encuentra por debajo de las 100 cuentas por segundo recomendadas.

La resolución en energía – estimada como el ancho del pico a mitad de altura para el fotopico de 1.33 MeV del ^{60}Co – obtenida fue de 1.84 keV, 7.6 % mayor que el valor informado por el fabricante 1.71 keV. En la Figura 26 se muestra el espectro obtenido y los parámetros del fotopico de 1.33 MeV para la fuente de ^{60}Co . Esta resolución es completamente adecuada para la resolución de los picos de los radionucleidos a determinar y es del orden de las resoluciones en energía reportadas en otros trabajos de determinaciones de estos radionucleidos en muestras ambientales (Arnedo et al. 2016; Baeza et al. 2016; De Paiva et al. 2015; Guidotti et al. 2015; Kovacs et al. 2013).

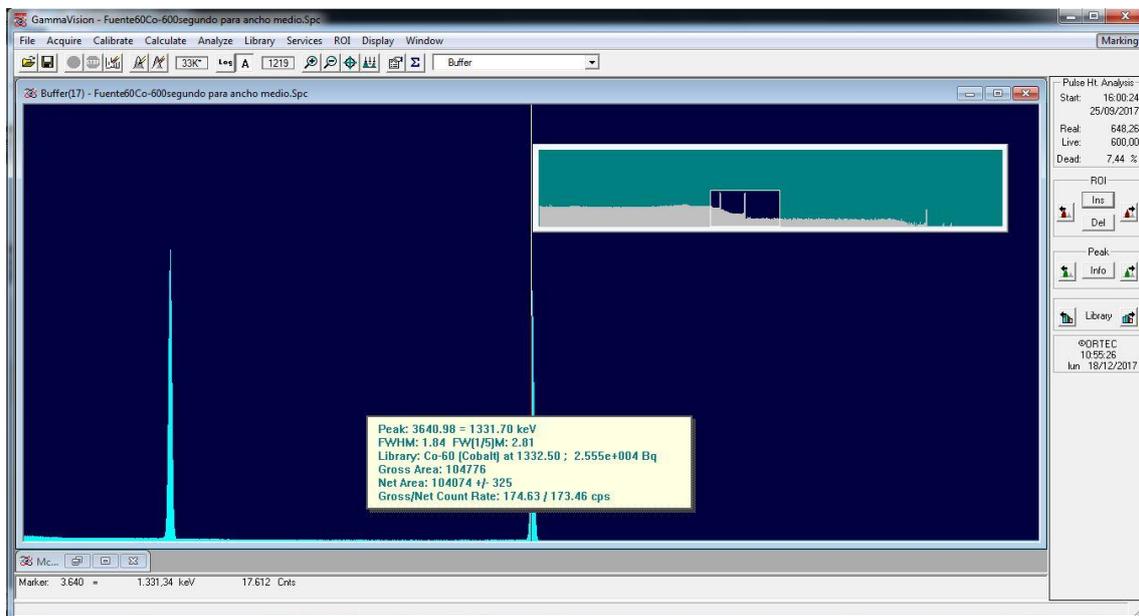


Figura 26: Espectro y parámetros del fotopico de 1.33 MeV obtenidos para la fuente de ^{60}Co de Eckert&Ziegler

El espectro obtenido durante la calibración en energía del sistema realizada con la fuente múltiple POLATOM se muestra en la Figura 27.

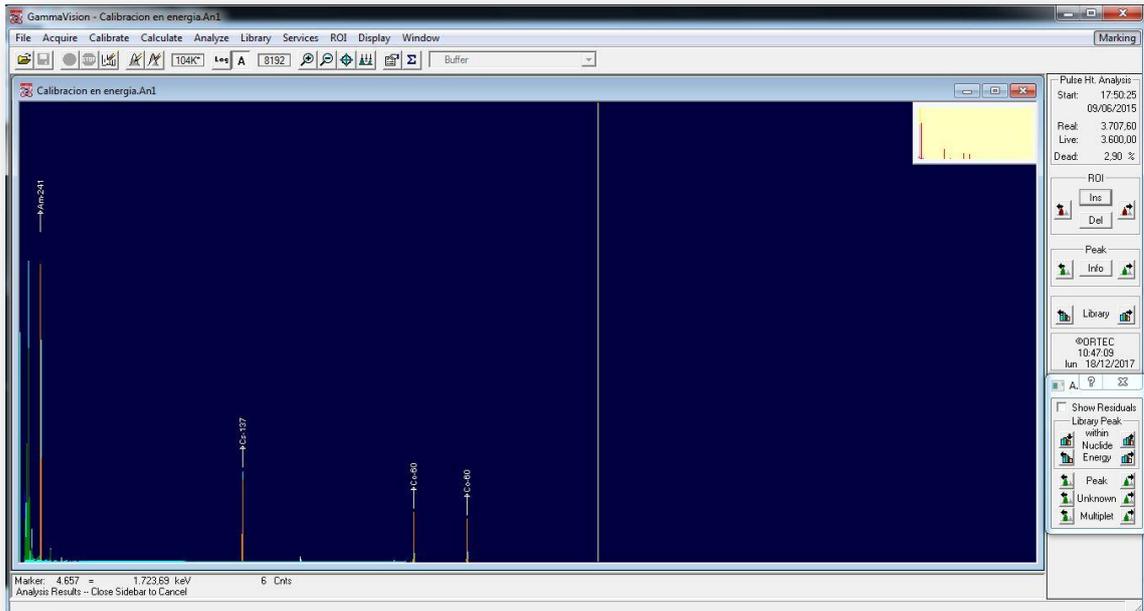


Figura 27: Espectro obtenido para la Fuente múltiple POLATOM (^{241}Am , ^{137}Cs , ^{60}Co)

A partir de este espectro surge la curva de calibración en energía de la Figura 28, donde se puede apreciar el buen ajuste lineal de la calibración.

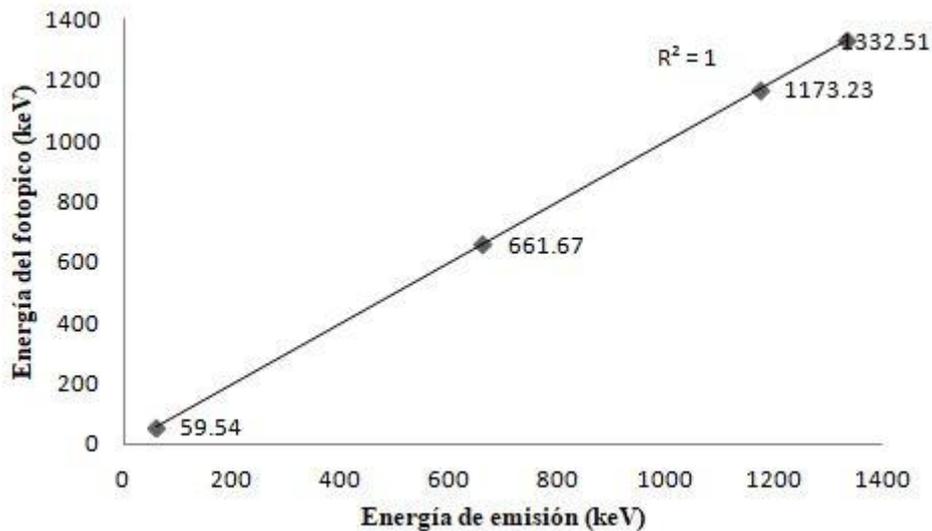


Figura 28: Curva de calibración en energía del sistema de espectrometría gamma ORTEC-AMETEK GMX35P4-76-RB

Los valores obtenidos para la calibración en eficiencia de tres de los detectores del contador proporcional alfa y beta total CANBERRA LB4200 se muestran en la Tabla 9, el cuarto detector no se utilizó debido a averías. Todas las determinaciones se realizaron utilizando el software Apex-Alpha beta versión 1.3.0.177 CANBERRA.

Detector	Eficiencia alfa (²⁴¹Am) %	Eficiencia alfa del fabricante (²¹⁰Po) %	Eficiencia beta (³⁶Cl) %	Eficiencia beta del fabricante (⁹⁰Sr/⁹⁰Y) %
1	36.77 ± 0.32	40.54 ± 0.43	54.95 ± 0.10	54.82 ± 0.05
2	38.55 ± 0.08	40.25 ± 0.85	55.47 ± 0.15	55.43 ± 0.06
3	38.61 ± 0.09	40.22 ± 0.14	56.06 ± 0.13	56.91 ± 0.05

Tabla 9: Eficiencias obtenidas para los 3 detectores del contador proporcional alfa y beta total CANBERRA LB 4200

Estos valores de eficiencia están de acuerdo con los reportados por el fabricante (CANBERRA 2014), como se puede apreciar en la Tabla.

La estadística de conteo del sistema, se verificó en el marco de la beca de iniciación a la investigación del Lic. Germán Azcune, razón por la cual no se detalla aquí. La estadística de conteo resultó ser Poissoniana lo que permite utilizar el equipo para determinaciones de actividad.

Nº muestra	Playa	Concentración de actividad (Bq.kg ⁻¹)		
		²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
1	La Moza	39.2 ± 1.3	79.4 ± 6.4	99.8 ± 2.9
2	La Moza	51.7 ± 1.7	62.5 ± 5.1	93.6 ± 2.7
3	La Moza	4.49 ± 0.34	4.49 ± 0.57	163.5 ± 4.4
4	Las Achiras	20.32 ± 0.80	27.7 ± 2.4	95.6 ± 2.8
5	Las Achiras	15.75 ± 0.68	20.6 ± 1.9	111.0 ± 3.1
6	Las Achiras	4.30 ± 0.22	3.86 ± 0.42	240 ± 12
7	Playa Grande	5.53 ± 0.36	8.88 ± 0.94	143.1 ± 3.8
8	Playa Grande	9.92 ± 0.51	8.04 ± 0.88	134.7 ± 3.7
9	Playa Grande	33.39 ± 0.83	73.8 ± 3.9	121.3 ± 6.8
10	Punta del Diablo	5.75 ± 0.36	6.12 ± 0.70	90.0 ± 2.8
11	Punta del Diablo	13.82 ± 0.62	19.2 ± 1.8	93.8 ± 2.8
12	Punta del Diablo	8.18 ± 0.44	10.3 ± 1.0	112.0 ± 3.2
13	La Esmeralda	4.79 ± 0.33	5.09 ± 0.60	151.4 ± 4.0
14	La Esmeralda	3.77 ± 0.21	5.85 ± 0.53	183.6 ± 9.4
15	La Esmeralda	3.79 ± 0.21	5.48 ± 0.51	157.1 ± 8.3
16	Aguas Dulces	4.98 ± 0.33	2.30 ± 0.34	170.8 ± 4.3
17	Aguas Dulces	8.20 ± 0.44	17.0 ± 1.6	136.4 ± 3.6
18	Aguas Dulces	9.04 ± 0.43	18.7 ± 1.6	150.5 ± 3.6
19	Barra de Valizas	25.11 ± 0.94	45.4 ± 3.8	81.9 ± 2.5
20	Barra de Valizas	36.4 ± 1.3	95.1 ± 7.6	73.3 ± 2.3
21	Barra de Valizas	55.2 ± 1.7	78.7 ± 6.3	80.0 ± 2.5
22	Barra de Valizas	24.05 ± 0.81	59.7 ± 4.9	165.3 ± 4.2
23	San Antonio	4.46 ± 0.31	6.20 ± 0.70	418.4 ± 8.7
24	Santa Isabel	10.26 ± 0.52	17.1 ± 1.6	198.4 ± 4.9
25	Santa Isabel	4.10 ± 0.28	3.26 ± 0.42	287.5 ± 6.3
26	Santa Isabel	5.87 ± 0.26	19.2 ± 1.3	417.6 ± 19.6
27	La Pedrera	5.59 ± 0.36	7.16 ± 0.79	386.2 ± 8.3
28	La Pedrera	3.84 ± 0.30	7.24 ± 0.80	416.7 ± 8.8
29	La Pedrera	5.23 ± 0.24	13.37 ± 0.96	367.6 ± 17.3
30	Costa Azul	14.62 ± 0.64	29.8 ± 2.6	167.5 ± 4.3
31	Costa Azul	4.43 ± 0.23	7.56 ± 0.64	346.9 ± 16.8
32	Arachania	11.65 ± 0.40	34.0 ± 2.0	268.3 ± 13.2
33	La Aguada	4.49 ± 0.30	10.9 ± 1.1	192.1 ± 4.7
34	La Aguada	4.21 ± 0.31	5.82 ± 0.67	268.3 ± 6.2
35	La Aguada	15.67 ± 0.67	29.2 ± 2.6	204.5 ± 5.0
36	Anaconda	48.3 ± 1.6	161.9 ± 12.5	59.2 ± 2.0

37	Anaconda	9.03 ± 0.35	20.9 ± 1.4	96.1 ± 5.5
38	La Serena	4.69 ± 0.32	5.42 ± 0.63	115.4 ± 3.2
39	La Serena	4.17 ± 0.31	3.75 ± 0.49	127.3 ± 3.5
40	La Serena	14.15 ± 0.45	43.2 ± 2.5	112.1 ± 6.2

Tabla 10: Concentración de actividad de los radionucleidos ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K en las muestras de arena del Departamento de Rocha

Los límites de detección para ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K son 0.24 Bq, 0.21 Bq y 1.02 Bq respectivamente. Esto implica un límite de detección de aproximadamente $0.24 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, $0.21 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ y $1.02 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ respectivamente dependiendo en cada caso de la densidad de la muestra.

Las muestras fueron tomadas en las playas donde se encuentran centros poblados, debido a que se quiere evaluar incidencia en la Población, dado que en la franja costera existen amplias zonas despobladas. Se agruparon los balnearios en 4 áreas para su estudio. Las mencionadas áreas son: Santa Teresa – Punta del Diablo; La Esmeralda; Barra de Valizas – Aguas Dulces y La Paloma – San Antonio.

En la Tabla 11 se pueden apreciar los promedios obtenidos por Playa y por área de muestreo.

Área de estudio	Playa	Promedio de concentración de actividad (Bq.kg ⁻¹)		
		²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
Santa Teresa – Punta del Diablo	La Moza	31.8 ± 1.3	48.8 ± 4.7	119.0 ± 3.4
	Las Achiras	13.46 ± 0.62	17.4 ± 1.8	149.0 ± 3.1
	Playa Grande	16.28 ± 0.30	30.2 ± 2.4	133.0 ± 5.0
	Punta del Diablo	9.25 ± 0.49	11.9 ± 1.3	98.6 ± 2.9
	Promedio	17.7 ± 0.63	27.1 ± 1.4	124.9 ± 3.7
La Esmeralda	La Esmeralda	4.12 ± 0.26	5.47 ± 0.55	164.0 ± 7.6
Barra de Valizas – Aguas Dulces	Aguas Dulces	7.41 ± 0.40	12.7 ± 1.3	152.6 ± 3.9
	Barra de Valizas	35.2 ± 1.4	69.7 ± 6.7	100.1 ± 3.4
	Promedio	21.3 ± 1.1	41.2 ± 4.9	126.4 ± 2.6
La Paloma – San Antonio	San Antonio	4.46 ± 0.31	6.20 ± 0.70	418.4 ± 8.7
	Santa Isabel	6.74 ± 0.37	13.2 ± 1.2	301 ± 12
	La Pedrera	4.89 ± 0.30	9.26 ± 0.85	390 ± 12
	Arachania	11.65 ± 0.40	34.0 ± 2.0	268 ± 13
	Costa Azul	9.52 ± 0.48	18.7 ± 1.9	257 ± 12
	La Aguada	8.12 ± 0.46	15.3 ± 1.7	221.6 ± 5.3
	Anaconda	28.7 ± 1.2	91.4 ± 8.9	77.6 ± 4.1
	La Serena	7.67 ± 0.37	17.5 ± 1.5	118.3 ± 4.5
	Promedio	10.21 ± 0.55	25.7 ± 3.4	257 ± 19
	Rango Mundial	17 – 60	11 – 64	140 – 850
Promedio Mundial	35	30	400	

Tabla 11: Promedio de concentración de actividad de los radionucleidos ²³²Th, ²²⁶Ra y ⁴⁰K en los Balnearios del Departamento de Rocha

En la Figura 30 se pueden apreciar las distribuciones espaciales de los tres radionucleidos en la costa del departamento de Rocha (²²⁶Ra, ²³²Th y ⁴⁰K), obtenidas con el software libre QGIS Desktop 2.18.11. En la misma se puede apreciar que las áreas Barra de Valizas – Aguas Dulces y Santa Teresa – Punta del Diablo presentan mayores concentraciones de actividad de ²²⁶Ra y ²³²Th y la zona La Paloma – San Antonio mayor concentración de actividad de ⁴⁰K.

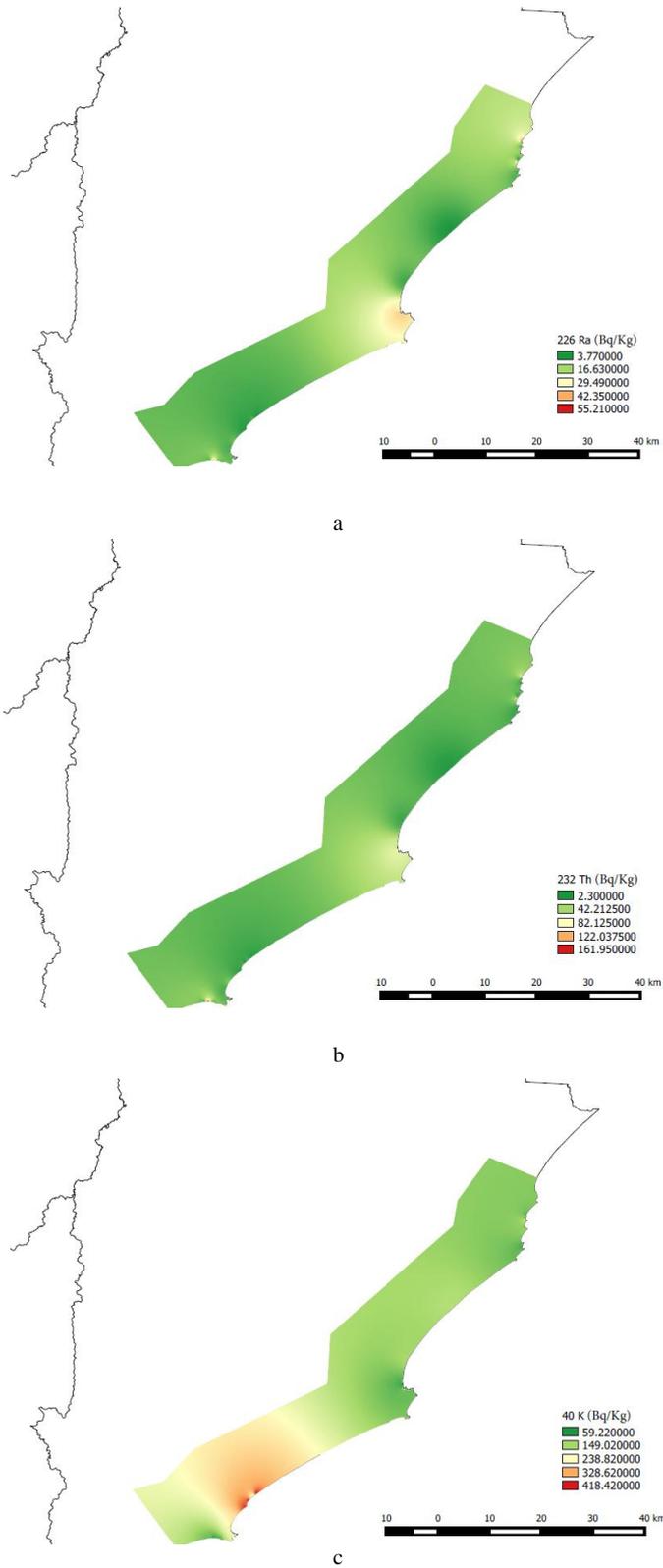


Figura 30: Distribución espacial de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K en la costa del Departamento de Rocha

Como se puede apreciar los promedios de concentración de actividad obtenida por balneario y por área de estudio para ^{226}Ra son menores que el promedio mundial reportado por UNSCEAR (UNSCEAR 2008). El máximo valor de concentración de actividad promedio por playa fue obtenido para el Balneario Barra de Valizas.

Por otro lado los valores promedio de concentración de actividad obtenidos por playa para el radionucleido ^{232}Th son mayores que el promedio mundial reportado por UNSCEAR para las playas de Anaconda, Barra de Valizas y la Moza, superando en ocasiones el máximo del rango mundial. Estas playas coinciden o están muy próximas a los tres yacimientos reportados en el Departamento de Rocha: La Pedrera (en las proximidades de Anaconda), Aguas Dulces y La Coronilla (playa adyacente a la Moza) (Píriz Mc. Coll 1953 a, b).

Los resultados obtenidos confirman que los minerales pesados en la mayoría de la playas estudiadas están concentrados en vetas (Bossi y Navarra 2000) – lo que hace que la concentración de los radionucleidos naturales varíe drásticamente entre muestras, aún de la misma playa –. Este es el caso de playas como La Moza y Anaconda, donde la concentración de actividad varía drásticamente por lo tanto el promedio de concentración de actividad para ^{226}Ra es menor que el promedio mundial aún cuando algunas muestras poseen concentración de actividades mayores. En estos casos son necesarias más determinaciones. Este fenómeno también ocurre en playas brasileñas como fue reportado por Veiga y Barros (Veiga et al (2006); Barros y Pecequilo (2014)).

La mayoría de las muestras posee concentración de actividad de ^{226}Ra y ^{232}Th mayores que El Pinar - Balneario con costas al Río de la Plata ($34^{\circ} 47' 47.99''$ S - $55^{\circ} 52' 18.68''$ O) - utilizado como blanco para comparación, donde la concentración de actividad de ^{226}Ra es de $2.52 \pm 0.24 \text{ Bq.kg}^{-1}$ y la de ^{232}Th es de $3.78 \pm 0.48 \text{ Bq.kg}^{-1}$.

Las concentraciones de actividad para ^{40}K obtenidas son en general menores a la media mundial, esto también es comparable a los valores reportados para playas brasileñas (Freitas y Alencor 2004, Veiga et al. 2006).

Si se analizan las áreas definidas anteriormente, el área Barra de Valizas –Aguas Dulces posee promedio de concentración de actividad de ^{232}Th mayor que el promedio mundial, mientras que todas las áreas presentan concentración de actividad de ^{226}Ra y ^{40}K menor al promedio mundial. El área Barra de Valizas – Aguas Dulces presenta mayor

concentración de actividad promedio de ^{226}Ra y el área La Paloma –San Antonio presenta mayor concentración de actividad promedio de ^{40}K . Las concentraciones de actividad promedio para el área Barra de Valizas - Aguas Dulces son del orden de las reportadas para playas de Pernambuco (De Paiva et al. 2015), algunas playas en Sao Paulo y Rio de Janeiro (Brasil) (Veiga et al. 2016), Calabria (Italia) (Caridi et al. 2016) y de suelos en Gran Canarias (España) (Arnedo et al. 2017), Buenos Aires (Argentina) (Montes et al. 2016) y Texas (USA) (Hannan et al. 2015), mientras que en promedio las concentraciones de actividad son menores que las encontradas para playas en Brasil donde arenas negras son reportadas, aunque algunas playas presentan concentraciones de actividades del mismo orden (Praia Preta en Río de Janeiro y Victoria en Espírito Santo) (Freitas y Alencar 2004; Veiga et al. 2016). En ningún caso, ni las playas individuales ni las áreas delimitadas presentan concentraciones de actividad mayores al orden de las reportadas para playas como Porto Seguro y Guarapari en Brasil (Veiga et al. 2016).

En la Tabla 12 se muestra una comparación entre los resultados obtenidos para las arenas de las áreas antes mencionadas y algunos resultados reportados para arenas y suelos en la Región y el Mundo.

	Concentración de actividad promedio (Bq.kg ⁻¹)			Referencia
	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	
Área La Paloma – San Antonio	10.22 ± 0.55	25.7 ± 3.4	257 ± 19	Este Trabajo
Área Barra de Valizas – Aguas Dulces	21.3 ± 1.1	41.2 ± 4.9	126.4 ± 2.6	Este Trabajo
Área La Esmeralda	4.11 ± 0.15	5.47 ± 0.32	164.0 ± 4.4	Este Trabajo
Área Santa Teresa-Punta del Diablo	17.70 ± 0.63	27.1 ± 2.8	124.9 ± 3.7	Este Trabajo
Chico Science Pernambuco – Brasil	24.0 ± 4.0	41.0 ± 6.0	414 ± 87	De Paiva et al. 2015
Rio Formoso Pernambuco – Brasil	21.0 ± 4.0	43.0 ± 7.0	869 ± 193	De Paiva et al. 2015
Praia Preta, Rio de Janeiro – Brasil	121 ± 33	239 ± 74	110 ± 62	Freitas A.C. and Alencar. A.S. 2004
Praia Dois Rios, Rio de Janeiro- Brasil	39 ± 28	48 ± 30	412 ± 82	Freitas A.C. and Alencar. A.S. 2004
Santos-Brasil	36 ± 3	49 ± 4	444 ± 32	Veiga et al. 2006
Arraial do Cabo-Brasil	35 ± 4	49 ± 8	602 ± 95	Veiga et al. 2006
Guarapari-Brasil	4043 ± 1664	55537 ± 20816	63 ± 32	Veiga et al. 2006
Vitoria-Brasil	49 ± 40	77 ± 67	27 ± 3	Veiga et al. 2006
Porto Seguro – Brasil	313 ± 275	1735 ± 1529	25 ± 10	Veiga et al. 2006
Itacaré - Brasil	572 ± 284	886 ± 505	32 ± 9	Veiga et al. 2006
Fernando de Noronha-Brasil	4.7 – 550	10.5 - 298	12.7 – 1280	Ribeiro et al. 2016
Buenos Aires – Argentina	22 ± 3	37 ± 4	597 ± 46	Montes et al. 2016
Calabria – Italia	39-98	14-65	567-932	Caridi et al. 2016
Gran Canaria – España	34.0 ± 1.6	44.0 ± 1.6	421.0 ± 2.3	Arnedo et al. 2017
Irán	24.3 ± 0.2	25.8 ± 0.3	457.7 ± 5.4	Kardan et al. 2017
Kuwait	5.9- 32.3	3.5- 27.3	74-698	Alazemi et al. 2016
Texas -USA	33.7 ± 11.7	31.9 ± 10.3	299.7 ± 96.5	Hannan et al. 2015
Rango Mundial	17 – 60	11 – 64	140 – 850	UNSCEAR 2008
Promedio Mundial	35	30	400	UNSCEAR 2008

Tabla 12: Comparación de la concentración de actividades por áreas de la Costa del Departamento de Rocha y la reportada para otros lugares de la Región y el Mundo

4.II.2. Evaluación de zonas potenciales de riesgo radiológico por la presencia de ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K

Se calcularon los índices antes descritos en 3.III.1., con los valores obtenidos de concentración de actividad de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K en las muestras de arena, obteniéndose los resultados que se reportan en la Tabla 13.

Nº muestra	Playa	D (nGy.h ⁻¹)	AEDE (μSv.yr ⁻¹)	Ra _{eq} (Bq.kg ⁻¹)	H _{ex}
1	La Moza	70.2 ± 3.9	86.1 ± 4.8	160.5 ± 9.2	0.430 ± 0.025
2	La Moza	65.5 ± 3.2	80.4 ± 3.9	148.3 ± 7.5	0.400 ± 0.020
3	La Moza	11.81 ± 0.42	14.49 ± 0.52	23.89 ± 0.95	0.0600 ± 0.0026
4	Las Achiras	30.1 ± 1.5	36.9 ± 1.9	67.2 ± 3.6	0.1800 ± 0.0097
5	Las Achiras	24.3 ± 1.2	29.8 ± 1.5	53.7 ± 2.8	0.1500 ± 0.0076
6	Las Achiras	14.22 ± 0.57	17.43 ± 0.70	28.1 ± 1.1	0.3300 ± 0.0030
7	Playa Grande	13.88 ± 0.61	17.03 ± 0.75	29.2 ± 1.4	0.0800 ± 0.0038
8	Playa Grande	15.06 ± 0.60	18.47 ± 0.74	31.8 ± 1.4	0.0900 ± 0.0037
9	Playa Grande	65.1 ± 2.4	79.8 ± 3.0	148.2 ± 5.7	0.400 ± 0.015
10	Punta del Diablo	10.11 ± 0.47	12.40 ± 0.57	21.4 ± 1.1	0.0600 ± 0.0029
11	Punta del Diablo	21.8 ± 1.1	26.8 ± 1.4	18.4 ± 2.6	0.1300 ± 0.0071
12	Punta del Diablo	14.68 ± 0.68	18.00 ± 0.83	31.5 ± 1.6	0.0900 ± 0.0043
13	La Esmeralda	11.60 ± 0.43	14.23 ± 0.52	23.73 ± 0.97	0.0600 ± 0.0026
14	La Esmeralda	12.93 ± 0.52	15.86 ± 0.63	26.3 ± 1.1	0.0700 ± 0.0029
15	La Esmeralda	11.61 ± 0.47	14.24 ± 0.58	23.72 ± 0.99	0.0600 ± 0.0027
16	Aguas Dulces	10.74 ± 0.31	13.17 ± 0.38	22.67 ± 0.67	0.0600 ± 0.0018
17	Aguas Dulces	12.2 ± 1.0	15.0 ± 1.2	25.1 ± 2.4	0.0700 ± 0.0063
18	Aguas Dulces	19.8 ± 1.0	24.2 ± 1.2	43.0 ± 2.3	0.1200 ± 0.0063
19	Barra de Valizas	42.4 ± 2.3	52.0 ± 2.9	96.3 ± 5.5	0.260 ± 0.015
20	Barra de Valizas	77.3 ± 4.6	94.8 ± 5.6	178 ± 11	0.480 ± 0.029
21	Barra de Valizas	76.4 ± 3.9	93.7 ± 4.8	173.9 ± 9.2	0.470 ± 0.025
22	Barra de Valizas	54.9 ± 3.0	67.4 ± 3.7	123.8 ± 7.1	0.330 ± 0.019
23	San Antonio	23.27 ± 0.58	28.54 ± 0.71	45.6 ± 1.2	0.1200 ± 0.0034

24	Santa Isabel	23.4 ± 1.0	28.6 ± 1.3	50.0 ± 2.4	0.1400 ± 0.0065
25	Santa Isabel	15.85 ± 0.39	19.44 ± 0.48	30.90 ± 0.82	0.0800 ± 0.0022
26	Santa Isabel	31.8 ± 1.1	38.9 ± 1.4	65.5 ± 2.4	0.1800 ± 0.0064
27	La Pedrera	23.01 ± 0.61	28.22 ± 0.75	45.6 ± 1.3	0.1200 ± 0.0036
28	La Pedrea	23.52 ± 0.62	28.85 ± 0.76	46.3 ± 1.4	0.1200 ± 0.0037
29	La Pedrera	25.84 ± 0.93	31.7 ± 1.1	52.7 ± 1.9	0.1400 ± 0.0052
30	Costa Azul	31.7 ± 1.6	38.9 ± 2.0	70.1 ± 3.8	0.140 ± 0.010
31	Costa Azul	21.08 ± 0.81	25.85 ± 0.99	42.0 ± 1.6	0.1100 ± 0.0043
32	Arachania	37.1 ± 1.4	45.5 ± 1.7	81.0 ± 3.1	0.2200 ± 0.0084
33	La Aguada	16.66 ± 0.70	20.43 ± 0.86	34.8 ± 1.6	0.0900 ± 0.0044
34	La Aguada	16.65 ± 0.50	20.42 ± 0.61	33.2 ± 1.1	0.0900 ± 0.0030
35	La Aguada	33.4 ± 1.6	41.0 ± 2.0	73.1 ± 3.8	0.200 ± 0.010
36	Anaconda	122.6 ± 7.6	150.4 ± 9.3	284 ± 18	0.770 ± 0.048
37	Anaconda	20.78 ± 0.87	25.5 ± 1.1	46.3 ± 2.0	0.1200 ± 0.0055
38	La Serena	10.25 ± 0.43	12.58 ± 0.53	21.33 ± 0.99	0.0600 ± 0.0022
39	La Serena	9.50 ± 0.36	11.65 ± 0.44	19.34 ± 0.81	0.0500 ± 0.0022
40	La Serena	37.3 ± 1.5	45.7 ± 1.9	84.5 ± 3.6	0.2300 ± 0.0097

Tabla 13: Índices de riesgo radiológico – calculados a partir de las concentraciones de actividades - de las arenas de las Playas del Departamento de Rocha. Tasa de Dosis Absorbida (D), Dosis equivalente efectiva anual (AEDE), Actividad Equivalente en Radio ($R_{a_{eq}}$) e Índice de riesgo externo (H_{ex})

En la Tabla 14 se muestran los promedios de la Tasa de dosis absorbida, dosis efectiva equivalente anual, actividad equivalente de Radio e Índice de riesgo externo promedios por playa, así como los promedios en las áreas antes identificadas.

Área	Playa	D (nGy.h ⁻¹)	AEDE (μSv.yr ⁻¹)	Ra _{eq} (Bq.kg ⁻¹)	H _{ex}
Área Santa Teresa- Punta del Diablo	La Moza	49.2 ± 2.9	60.3 ± 3.4	111.9 ± 6.9	0.297 ± 0.019
	Las Achiras	22.9 ± 1.1	28.0 ± 1.4	49.7 ± 2.6	0.2200 ± 0.0071
	Playa Grande	31.3 ± 1.5	38.4 ± 1.8	69.7 ± 3.4	0.1900 ± 0.0092
	Punta del Diablo	15.53 ± 0.80	19.07 ± 0.98	23.8 ± 1.9	0.0933 ± 0.0051
	Promedio	29.7 ± 1.8	36.5 ± 2.2	63.5 ± 4.2	0.200 ± 0.011
Área la Esmeralda	La Esmeralda	12.05 ± 0.82	14.80 ± 0.34	24.60 ± 0.58	0.0633 ± 0.0016
Área Barra de Valizas- Aguas Dulces	Aguas Dulces	14.24 ± 0.48	17.46 ± 0.59	30.3 ± 1.1	0.0833 ± 0.0030
	Barra de Valizas	62.77 ± 1.78	77.0 ± 2.2	143.0 ± 4.2	0.385 ± 0.011
	Promedio	38.5 ± 3.0	47.2 ± 3.7	86.6 ± 7.0	0.234 ± 0.019
Área La Paloma –San Antonio	San Antonio	23.27 ± 0.58	28.54 ± 0.71	45.6 ± 1.2	0.1200 ± 0.0034
	Santa Isabel	23.65 ± 0.55	29.00 ± 0.68	48.8 ± 1.2	0.1333 ± 0.0033
	La Pedrera	24.12 ± 0.43	29.59 ± 0.52	48.18 ± 0.91	0.1267 ± 0.0025
	Arachania	37.1 ± 1.3	45.5 ± 1.7	81.0 ± 3.1	0.2200 ± 0.0083
	Costa Azul	26.40 ± 0.91	32.4 ± 1.1	56.3 ± 2.1	0.1250 ± 0.0056
	La Aguada	22.20 ± 0.72	27.30 ± 0.88	47.1 ± 1.7	0.1270 ± 0.0045
	Anaconda	71.7 ± 3.8	87.9 ± 4.7	165.0 ± 9.0	0.445 ± 0.024
	La Serena	19.00 ± 0.55	23.30 ± 0.67	41.7 ± 1.3	0.1130 ± 0.0035
	Promedio	30.9 ± 2.2	37.9 ± 2.8	66.7 ± 5.2	0.176 ± 0.014
	Promedio Mundial	57	70		
Límite recomendado			< 370	< 1	

Tabla 14: Índices de riesgo radiológico promedio de las arenas de las Playas del Departamento de Rocha y de las cuatro áreas de estudio

Las tasas de dosis absorbida promedio obtenidas en función de las medidas de los tres radionucleidos naturales antes mencionados en muestras de arenas de las playas estudiadas del Departamento de Rocha están comprendidas entre 12.05 y 71.7 nGy.h⁻¹. La mayoría de los lugares estudiados dan tasas de dosis absorbidas del orden del rango mundial reportado por UNSCEAR (18 - 93 nGy.h⁻¹), sólo una muestra de la playa Anaconda da tasas de dosis absorbida mayor que el máximo valor del rango mundial reportado por UNSCEAR. Los resultados promedio para las playas de Barra de Valizas y Anaconda son mayores que el promedio mundial.

El promedio de dosis equivalente efectiva anual- calculada de acuerdo a lo descrito en 3.II.1. está entre 14.80 y 87.9 $\mu\text{Sv}\cdot\text{y}^{-1}$; los valores obtenidos para las playas de Barra de Valizas y Anaconda son mayores que el promedio mundial reportado por UNSCEAR 70 $\mu\text{Sv}\cdot\text{y}^{-1}$. En el caso particular de la playa Anaconda un valor individual es dos veces mayor que el promedio mundial pero comparable a valores obtenidos para otros lugares en el mundo como ser: suelo en Tailandia (Santawamaitre et al 2014), India (Bangotra et. al 2016), España (Arnedo et al. 2017) y arena en Italia (Caridi et al. 2016) Camerún (Guembou Shouop et al. 2017) y Brasil (Freitas y Alencar 2004). Ninguno de los puntos individuales reportados implica una tasa de dosis absorbida del orden de los valores reportados para las arenas de las playas de Espíritu Santo Brasil, como se puede apreciar en la Tabla 15.

Aún cuando existen playas con valores de dosis equivalente efectiva anual mayores que el promedio mundial, estos valores son menores que los máximos valores de dosis recomendados de exposición ya existente para público en general por la “International Commission on Radiological Protection” (ICRP) (ICRP 2007). Si se consideran las áreas antes mencionadas, en todas ellas el promedio de tasa de dosis absorbida y el promedio de dosis equivalente efectiva anual son menores que el promedio mundial.

Área	D (nGy.h ⁻¹)	AEDE (μSv.yr ⁻¹)	Referencia
Área Santa Teresa-Punta del Diablo	29.7 ± 1.8	36.5 ± 2.2	Este trabajo
Área La Esmeralda	12.05 ± 0.82	14.80 ± 0.34	Este trabajo
Área Barra de Valizas – Aguas Dulces	38.5 ± 3.0	47.2 ± 3.7	Este trabajo
Área La Paloma – San Antonio	30.9 ± 2.2	37.9 ± 2.8	Este trabajo
Cuenca del río Chao Phraya Tailandia	65 ± 27	79 ± 33	Santawamaitre et al. 2014
Mission, Texas, USA	48.4 ± 12.4	59.3 ± 15.2	Hannan et al. 2015
Praia Preta, Brasil	250 ± 58	150 ± 10	Freitas y Alencar 2004
Praia Dois Rios, Brasil	102 ± 29	80 ± 10	Freitas y Alencar 2004
Calabria, Italia	75- 88	93-109	Caridi et al. 2016
Región de Douala – Camerún	22.17 – 101.47	27.19-124.45	Guembou Shouop et al. 2017
Irán	12.7-91.4	20-110	Kardan et al. 2017
Kuwait	7.96-47.19	9.79-58.04	Alazemi et al 2016
Gran Canaria – España	35-348		Arnedo et al. 2017
Fernando de Noronha – Brasil	27-369	30-450	Ribeiro et al. 2016
Camburi -Espíritu Santo – Brasil	9-5160		Barros y Pecequilo 2014
Vitoria – Espíritu Santo – Brasil	14-2874		Aquino 2010
Guarapari – Brasil	6-4694		Aquino 2010
India	66-105	80-310	Bangotra et al. 2016
Promedio mundial	57	70	UNSCEAR 2008

Tabla 15: Tasa de dosis absorbida y Dosis Equivalente Efectiva anual por áreas de estudio en la costa del Departamento de Rocha y de otros lugares de la Región y del Mundo

Los valores obtenidos para los índices de Actividad Equivalente en Radio y de Índice externo se encuentran en todos los casos por debajo del valor límite de seguridad recomendado por la “Organization for Economic Cooperation and Development (OECD)”, por lo que su uso como material de construcción no constituye un riesgo

para la salud: esto es de particular relevancia en esta zona del País donde – aún cuando no legalmente – se utilizan las arenas de la zona para construir hogares.

Como se describió en el apartado anterior se pueden distinguir un área de mayor concentración de radionucleidos de las series de ^{238}U –cuantificado a través del ^{226}Ra - y ^{232}Th , Barra de Valizas – Aguas Dulces y una zona de mayor concentración de ^{40}K , La Paloma – San Antonio. Es claro que en todas las zonas estudiadas, -así como en otras zonas no estudiadas por ser zonas sin poblaciones- es necesario realizar mayores determinaciones. En este trabajo se seleccionó para comenzar con ello el área Barra de Valizas – Aguas Dulces. Esta selección se basa en que ésta es la zona de mayor concentración de los radionucleidos naturales de las series de ^{238}U y ^{232}Th , haciéndola particularmente interesante para estudios futuros de geología médica y de radioecología.

4.III. Evaluación del Área Barra de Valizas – Aguas Dulces

4.III.1. Caracterización fisicoquímica de las muestras

Contenido de materia orgánica y carbonatos

El contenido de materia orgánica máximo de las muestras de suelo del área varía entre 0.60 % y 3.9 %, mientras que el contenido de materia orgánica máximo de las muestras de arena del área de estudio varía entre 0.16 % y 0.75 %, según se puede apreciar en la Tabla 16. El contenido de carbonatos varía entre 0.011 y 0.76 % en arenas y entre 0.010 y 0.28 en suelos y sedimentos. Estos resultados también se detallan en la Tabla 16.

Nº muestra	% Materia Orgánica	% Carbonatos	Nº muestra	% Materia Orgánica	% Carbonatos
1 – Valizas (a)	0.54	0.12	19 – Valizas (s)	0.60	0.11
2 – Valizas (a)	0.37	0.42	20 – Valizas (s)	0.52	0.23
3 – Valizas (a)	0.63	0.19	21 – Briozzo (a)	0.31	0.55
4 – Valizas (a)	0.24	0.73	22 – Briozzo (a)	0.32	0.73
5 – Valizas (a)	0.31	0.42	23 – Briozzo (a)	0.35	0.42
6 – Valizas (s)	0.79	0.25	24 – Briozzo (a)	0.75	0.78
7 – Valizas (s)	1.4	0.085	25 – Briozzo (sd)	2.3	0.019
8 – Valizas (s)	1.3	0.14	26 – Briozzo (sd)	1.0	0.025
9 – Valizas (s)	1.4	0.13	27 – Briozzo (sd)	0.63	0.10
10 – Valizas (s)	0.68	0.22	28 – Briozzo (a)	0.53	0.76
11 – Valizas (a)	0.37	0.45	29 – Briozzo (a)	0.51	0.69
12 – Valizas (a)	0.32	0.33	30 – A. Dulces (a)	0.25	0.21
13 – Valizas (a)	0.38	0.52	31 – A. Dulces (a)	0.16	0.011
14 – Valizas (a)	0.40	0.70	32 – A. Dulces (a)	0.19	0.022
15 – Valizas (a)	0.35	0.62	33 – A. Dulces (a)	0.55	0.44
16 – Valizas (s)	1.1	0.010	34 – A. Dulces (a)	0.17	0.26
17 – Valizas (s)	3.9	0.031	35 – A. Dulces (a)	0.53	0.35
18 – Valizas (s)	3.0	0.14	36 – A. Dulces (s)	2.5	0.28

Tabla 16: Contenido máximo de materia orgánica y carbonatos en las muestras de suelo y arena del área Barra de Valizas – Aguas Dulces ((a) arenas, (s) suelos y (sd) sedimentos)

Tamaño de partículas y composición de minerales

Las arenas y los sedimentos del área presentan una distribución de tamaño de partículas promedio según lo detallado en la Tabla 17 y la Figura 31. La fracción mayoritaria en todas las muestras es la de granulometría entre 200 y 300 μm , encontrándose entre 59 y 95 % dependiendo del origen de las muestras. La fracción menor a 50 μm es despreciable en todas las muestras, indicando probable ausencia de arcillas. La fracción mayor a 300 μm se compone principalmente de conchillas. La fracción entre 50 y 100 μm presenta clara coloración negra, de acuerdo a lo previsto en literatura donde los

minerales pesados (responsables de su coloración) aumentan en las fracciones de menor granulometría (Soares de Lima et al. 2002).

	Arena Aguas Dulces	Arena Valizas	Arena Lag. Briozzo	Sedimento Lag. Briozzo
50 μm < x < 100 μm	8	1	2	1
100 μm < x < 200 μm	18	17	38	3
200 μm < x < 300 μm	74	81	59	95
>300 μm	-	1	1	1

Tabla 17: Porcentaje de distribución promedio de tamaño de partículas en las arenas y sedimentos del área Barra de Valizas – Aguas Dulces

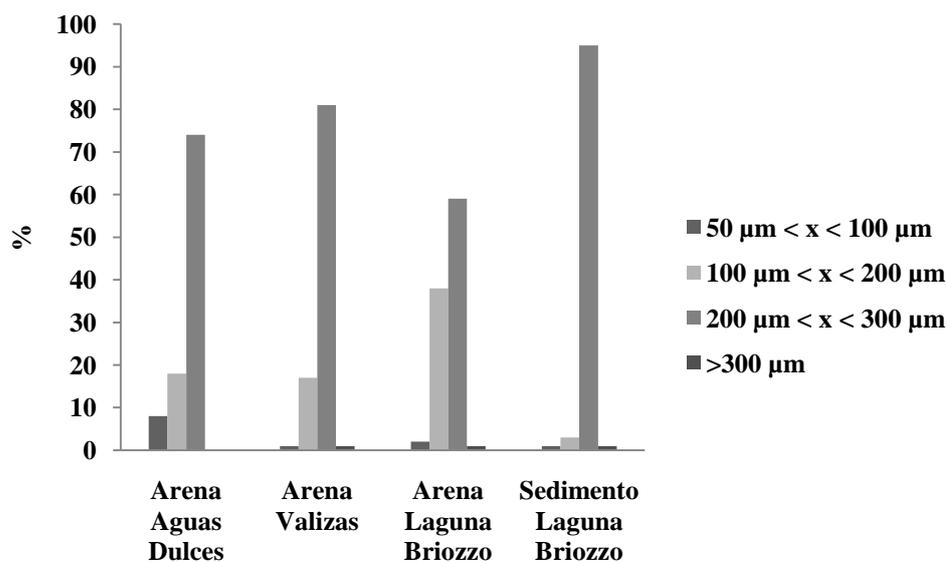


Figura 31: Distribución de tamaño de partículas de acuerdo al origen de las muestras.

Las distintas fracciones fueron analizadas por Difracción de rayos X, para ello fue empleado el software Highscore Plus, PANALytical y la base de datos Crystallographic Open Database (2016).

La Figura 32 muestra difractogramas de las distintas fracciones para una muestra representativa de arena. La Figura 33 muestra los difractogramas más representativos

mostrando los distintos minerales mayoritarios en las distintas fracciones de una muestra representativa de arena.

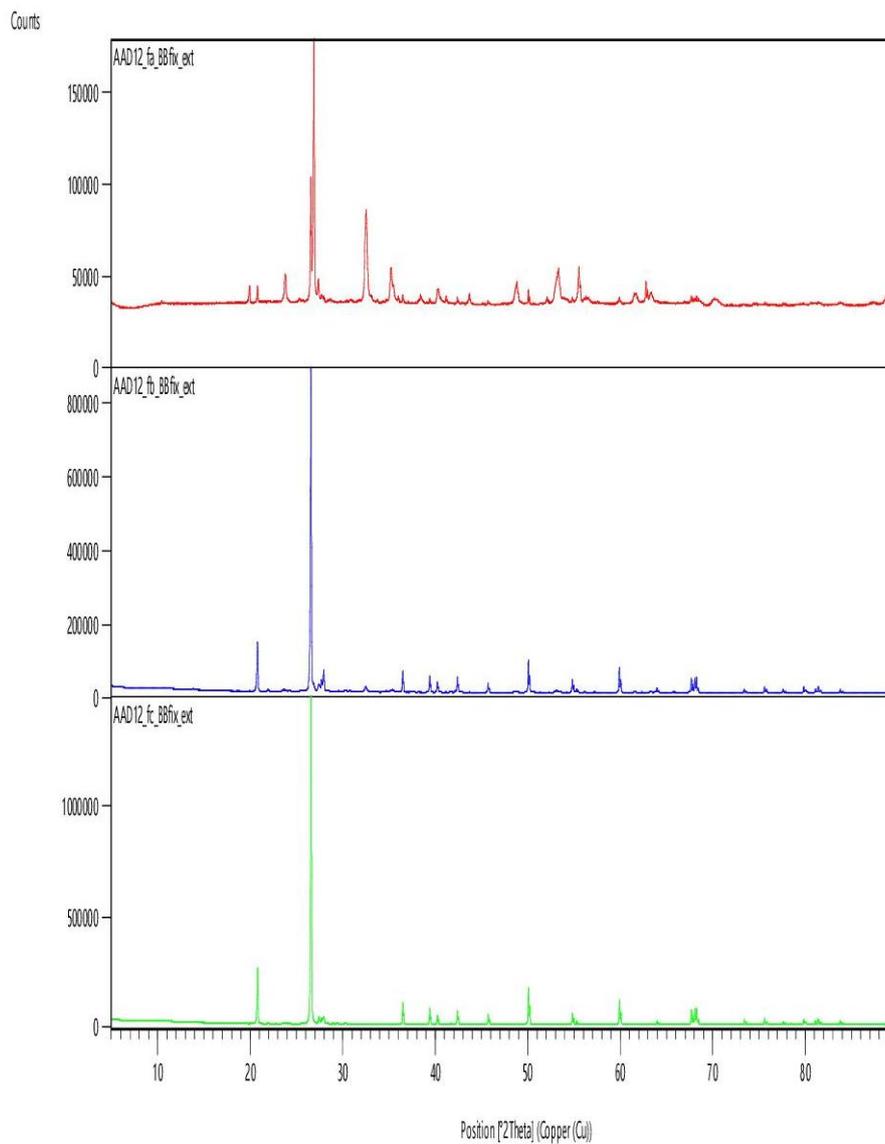
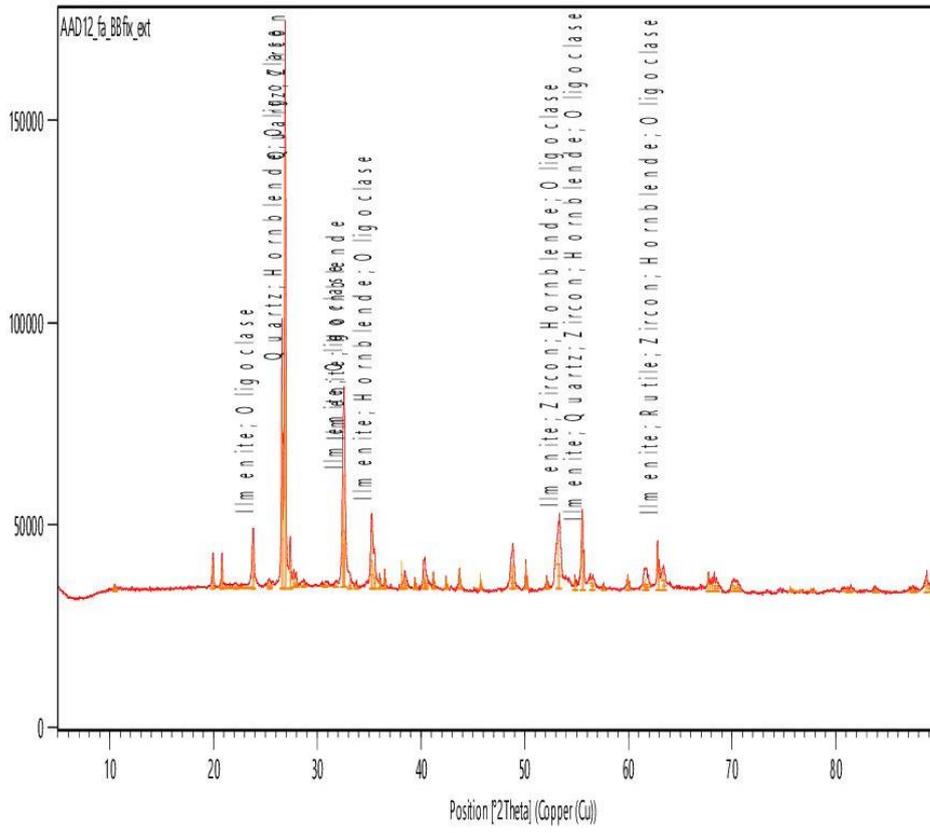


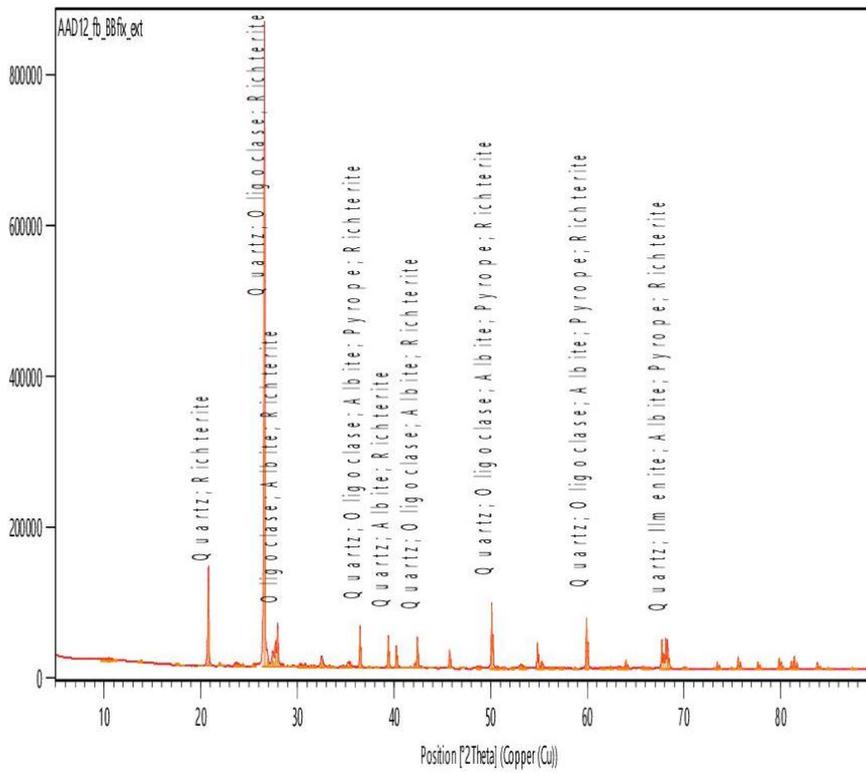
Figura 32: Difractogramas de una muestra representativa de arena, fracción a, $50 < x < 100 \mu\text{m}$ (rojo), fracción b $100 < x < 200 \mu\text{m}$ (azul) y fracción c $200 < x < 300 \mu\text{m}$ (verde)

Counts

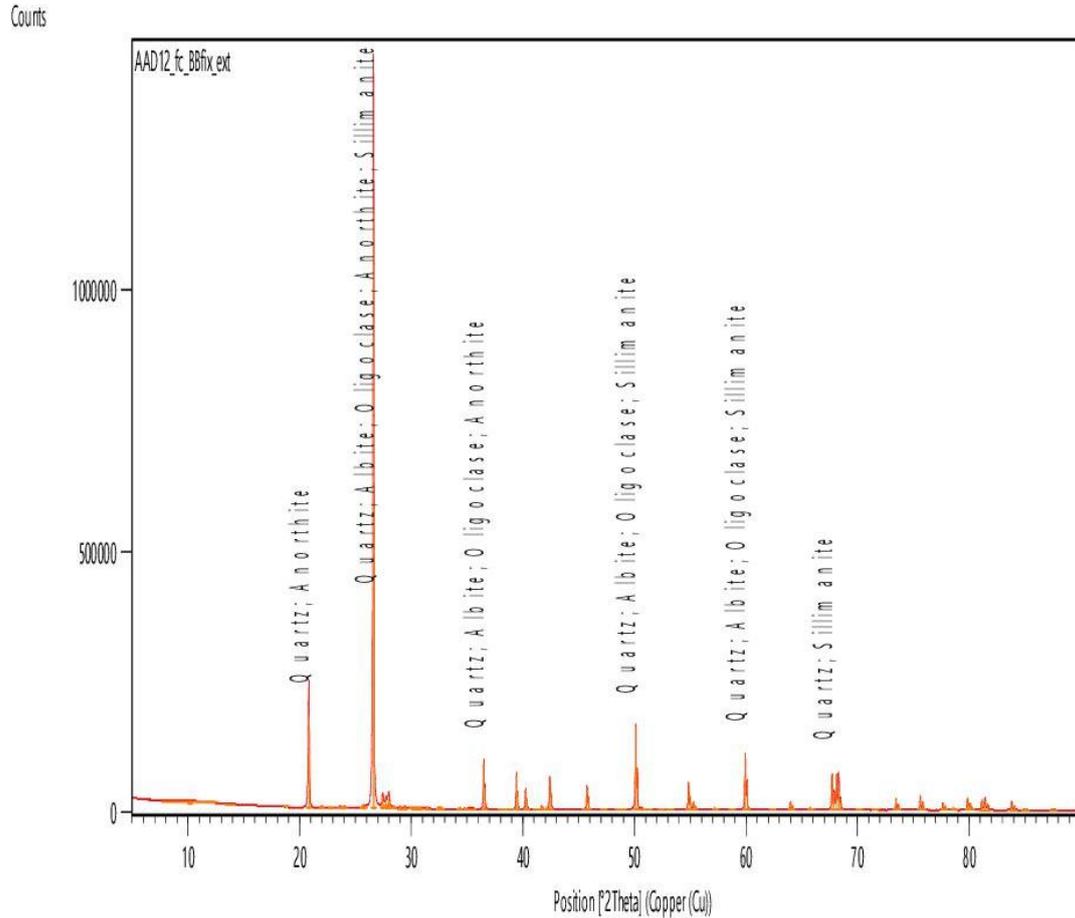


a

Counts



b



c

Figura 33: Minerales identificados en las distintas granulometrías de una muestra representativa de arena: a) fracción $50 < x < 100\ \mu\text{m}$, b) fracción $100 < x < 200\ \mu\text{m}$ y c) fracción $200 < x < 300\ \mu\text{m}$

Los minerales pesados se encuentran en las fracciones de menor granulometría, principalmente en la fracción $50 < x < 100\ \mu\text{m}$, mientras que en la fracción de mayor granulometría no se encuentran minerales pesados.

En la Tabla 18 se muestran los minerales identificados en cada fracción para muestras representativas de arena de playa y sedimento, por difracción de rayos X. Asimismo y sólo a efectos cualitativos, se muestran los porcentajes arrojados automáticamente por el software del equipo. Estos resultados son cualitativos y no se deben tomar como

evaluaciones cuantitativas pero muestran claramente que los minerales pesados se concentran en las fracciones de menor granulometría mientras que el cuarzo, los silicatos y feldespatos aumentan su concentración en las de mayor granulometría

Tipo de muestra	Granulometría	Mineral	% estimado
Arena de Playa	50 < x < 100 μm	Cuarzo	22
		Ilmenita	20
		Rutilo	5
		Zircón	22
		Anfíboles	11
		Feldespatos	20
	100 < x < 200 μm	Cuarzo	62
		Ilmenita	1
		Feldespatos	25
		Granate	6
		Anfíboles	6
	200 < x < 300 μm	Cuarzo	39
		Silicatos	49
		Feldespatos	12
	Sedimento Laguna	50 < x < 100 μm	Cuarzo
Ilmenita			3
Zircón			2
Feldespatos			35
Rutilo			2
Anfíboles			7.5
100 < x < 200 μm		Cuarzo	52
		Feldespatos	44
		Anfíboles	2
		Silicatos	< 1
		Zirconolita	< 1
		Uraninita	< 1

Tabla 18: Minerales identificados en cada fracción para muestras representativas de arena de playa y sedimento, por difracción de rayos X (porcentajes estimados)

Esta distribución de minerales es similar al encontrada en otros depósitos costeros de arenas negras, como ser en el Delta del Danubio (Margineanu et al. 2014), y Malasia (Begum et al. 2016).

pH de las aguas

El pH de las muestras de agua de cachimba y pozo del área de estudio varía entre 7.02 y 8.67, y el de las de la Laguna Clotilde Briozzo entre 7.20 y 7.60, como se puede apreciar en la Tabla 19.

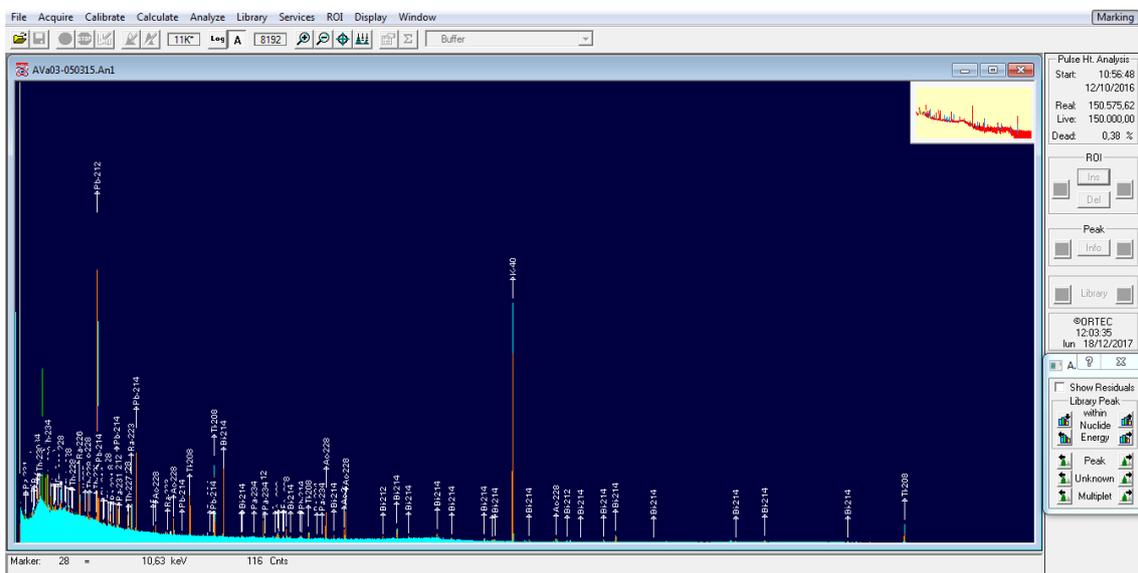
Nº muestra	pH	Nº muestra	Ph
H1- Valizas	7.80	H11- Valizas	7.30
H2- Valizas	8.16	H12- Valizas	7.78
H3- Valizas	8.20	H13- Briozzo	7.50
H4- Valizas	8.20	H14- Briozzo	7.75
H5- Valizas	8.67	H15- Briozzo	7.62
H6- Valizas	7.56	H16- Briozzo	7.60
H7- Valizas	8.20	H17- A. Dulces	7.10
H8- Valizas	8.06	H17- A. Dulces	7.15
H9- Valizas	7.20	H17- A. Dulces	7.02
H10- Valizas	7.05		

Tabla 19: pH de las muestras de agua del área Barra de Valizas – Aguas Dulces

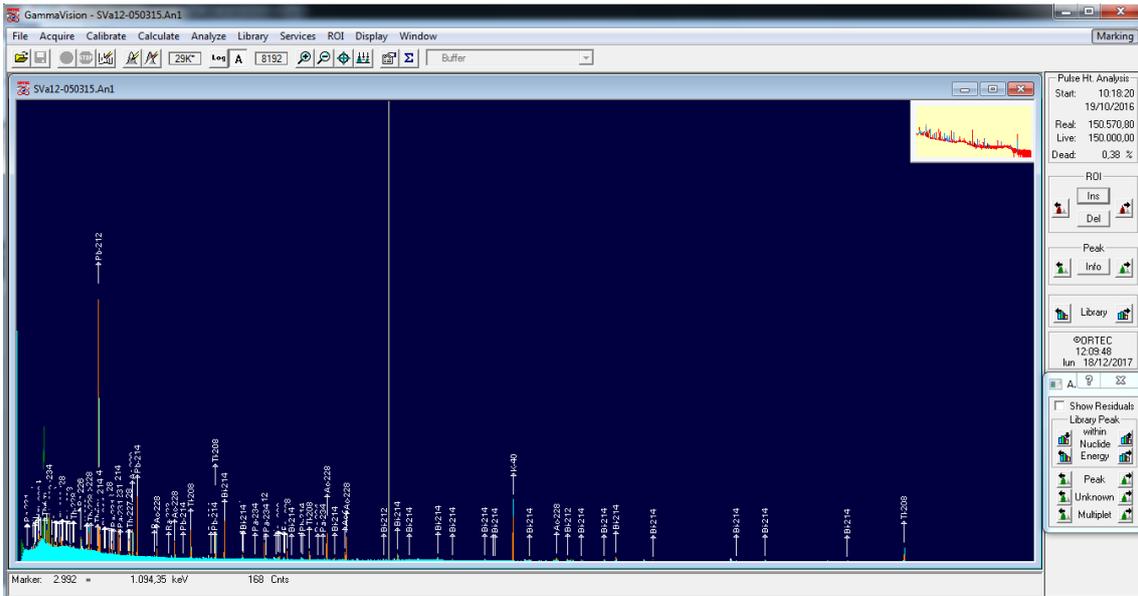
4.III.2. Evaluación de radionucleidos presentes en el compartimento arena – suelo

4.III.2.a Evaluación de la concentración de actividad de los radionucleidos ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K

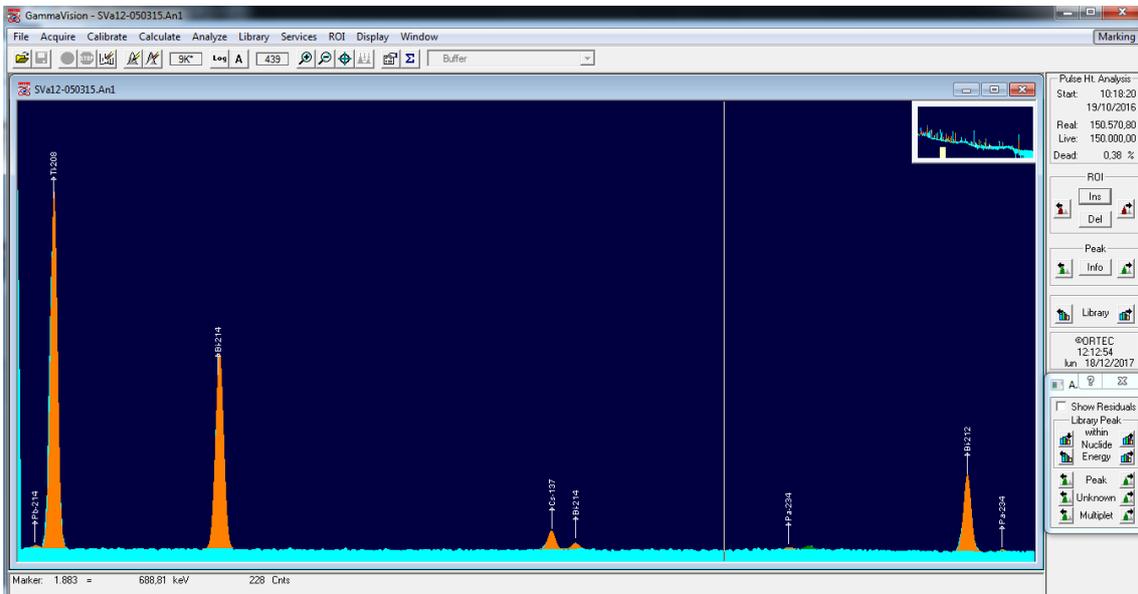
En la Figura 34 se muestran espectros gamma de una muestra de arena y de una muestra de suelo del área Barra de Valizas – Aguas Dulces. Las muestras de suelo y arena muestran espectros similares en lo que se refiere a los radionucleidos naturales estudiados, la diferencia a destacar está en la presencia de ^{137}Cs – radionucleido artificial – en las muestras de suelo de Barra de Valizas y Aguas Dulces y de sedimento de la Laguna Clotilde Briozzo.



a



b



c

Figura 34: Espectro gamma de muestra de arena (a), suelo (b) y (c) fotopico de ^{137}Cs en suelo del área Barra de Valizas – Aguas Dulces

En la Tabla 20 se muestran los resultados de concentración de actividad de ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K obtenidos para las arenas y suelos de la zona Barra de Valizas – Aguas Dulces; todos los resultados se expresan con un 95% de confianza.

Concentración de actividad (Bq.kg⁻¹)

Nº muestra	²²⁶Ra	²³²Th	⁴⁰K
1 – Valizas (a)	24.05 ± 0.91	59.7 ± 4.9	165.3 ± 4.2
2 – Valizas (a)	9.91 ± 0.35	31.1 ± 1.9	163.9 ± 8.5
3 – Valizas (a)	4.49 ± 0.22	8.95 ± 0.71	200 ± 10
4 – Valizas (a)	23.13 ± 0.63	70.4 ± 3.8	159.1 ± 8.3
5 – Valizas (a)	11.86 ± 0.39	29.0 ± 1.7	175.2 ± 9.0
6 – Valizas (s)	8.09 ± 0.35	25.0 ± 1.6	262 ± 13
7 – Valizas (s)	10.86 ± 0.41	30.6 ± 1.9	198 ± 10
8 – Valizas (s)	11.05 ± 0.40	23.3 ± 1.5	327 ± 16
9 – Valizas (s)	21.57 ± 0.69	53.6 ± 3.2	298 ± 15
10 – Valizas (s)	8.10 ± 0.33	18.8 ± 1.3	191.3 ± 9.9
11 – Valizas (a)	10.71 ± 0.37	25.2 ± 1.6	161.6 ± 8.4
12 – Valizas (a)	5.13 ± 0.25	12.01 ± 0.89	187.2 ± 9.6
13 – Valizas (a)	8.76 ± 0.33	18.7 ± 1.2	158.7 ± 8.3
14 – Valizas (a)	16.51 ± 0.49	54.2 ± 3.0	161.8 ± 8.4
15 – Valizas (a)	3.98 ± 0.21	12.54 ± 0.91	200 ± 10
16 – Valizas (s)	6.73 ± 0.29	19.4 ± 1.3	196 ± 10
17 – Valizas (s)	20.00 ± 0.72	60.1 ± 3.6	410 ± 21
18 – Valizas (s)	6.58 ± 0.30	9.33 ± 0.76	173.8 ± 9.1
19 – Valizas (s)	16.42 ± 0.52	58.9 ± 3.3	175.8 ± 9.2
20 – Valizas (s)	32.33 ± 0.85	110.6 ± 5.8	220 ± 11
21 – Briozzo (a)	67.9 ± 2.1	131 ± 10	88.9 ± 2.6
22 – Briozzo (a)	14.92 ± 0.65	43.6 ± 3.7	165.6 ± 4.2
23 – Briozzo (a)	13.71 ± 0.43	37.0 ± 2.1	150.6 ± 7.9
24 – Briozzo (a)	7.48 ± 0.31	22.6 ± 1.5	187.1 ± 9.7
25 – Briozzo (sd)	11.38 ± 0.42	24.5 ± 1.6	210 ± 11
26 – Briozzo (sd)	16.29 ± 0.51	54.1 ± 3.1	186.5 ± 9.7
27 – Briozzo (sd)	22.46 ± 0.63	62.0 ± 3.4	184.0 ± 9.3
28 – Briozzo (a)	7.82 ± 0.32	15.1 ± 1.1	178.2 ± 9.6
29 – Briozzo (a)	11.11 ± 0.39	44.3 ± 2.6	185.2 ± 9.6
30 – A. Dulces (a)	79.8 ± 1.6	355 ± 17	113.6 ± 6.2
31 – A. Dulces (a)	164.8 ± 3.0	749 ± 33	118.0 ± 6.3
32 – A. Dulces (a)	7.58 ± 0.31	20.5 ± 1.3	204 ± 10
33 – A. Dulces (a)	25.43 ± 0.68	133.5 ± 6.7	210 ± 11
34 – A. Dulces (a)	116.2 ± 2.2	398 ± 19	85.3 ± 4.9
35 – A. Dulces (a)	19.15 ± 0.57	53.2 ± 3.0	191.6 ± 9.8

36 – A. Dulces (s)	8.79 ± 0.37	21.35 ± 1.45	299 ± 15
Rango Mundial – UNSCEAR	17 – 60	11 – 64	140 – 850
Promedio Mundial – UNSCEAR	35	30	400

Tabla 20: Concentración de ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K en el área Barra de Valizas – Aguas Dulces ((a) arenas, (s) suelos y (sd) sedimentos)

En la Figura 35 se muestra la distribución espacial de la concentración de actividad de los tres radionucleidos primordiales determinados. Los mapas fueron obtenidos con el software libre QGIS Desktop 2.18.11.

Los resultados para la zona Barra de Valizas – Aguas Dulces confirman que el yacimiento es veteadado presentando variaciones de resultados entre muestras de un mismo lugar, coincidiendo con lo reportado previamente (Soares de Lima et al. 2002).

La concentración de actividad de ^{226}Ra varía entre 3.98 y 164.8 Bq.kg⁻¹ en la zona, encontrándose que todos los resultados para Barra de Valizas son menores al promedio mundial, mientras que algunos valores obtenidos para Aguas Dulces y Laguna de Briozzo son superiores al promedio mundial, llegando en algunos casos a ser superiores al máximo del rango reportado por UNSCEAR para suelo, por ejemplo para la muestra de la Laguna de Briozzo denominada 21 y para las muestras de arena de Aguas Dulces 29, 30 y 33. Estas últimas dos presentan valores dos veces mayor al máximo valor reportado por UNSCEAR.

La concentración de actividad de ^{232}Th varía entre 8.95 y 749 Bq.kg⁻¹. En general las muestras presentan mayor concentración de actividad de ^{232}Th que de ^{226}Ra , esto también está de acuerdo con la composición del yacimiento reportado por Píriz McColl (Píriz McColl 1953^a) donde la monacita presenta una composición de 4.75% de óxido de torio y 0.18% de óxido de uranio. A diferencia de lo que sucede con el ^{226}Ra , la concentración de actividad de ^{232}Th para el Balneario Barra de Valizas presenta valores superiores al promedio mundial tanto en muestras de arena como de suelo, encontrándose valores dos veces superiores al máximo valor del rango reportado por UNSCEAR. Una situación similar es lo que sucede en La Laguna de Briozzo. Los mayores valores de concentración de actividad se obtuvieron para la Playa de Aguas

Dulces, donde la mayoría de los valores obtenidos son superiores al promedio mundial, y al máximo del rango reportado por UNSCEAR, llegando en algunos casos a valores 11 veces superiores.

Los valores de concentración de actividad para ^{40}K son menores al promedio mundial, ubicándose en el rango de 85.3 a 410 $\text{Bq}\cdot\text{Kg}^{-1}$.

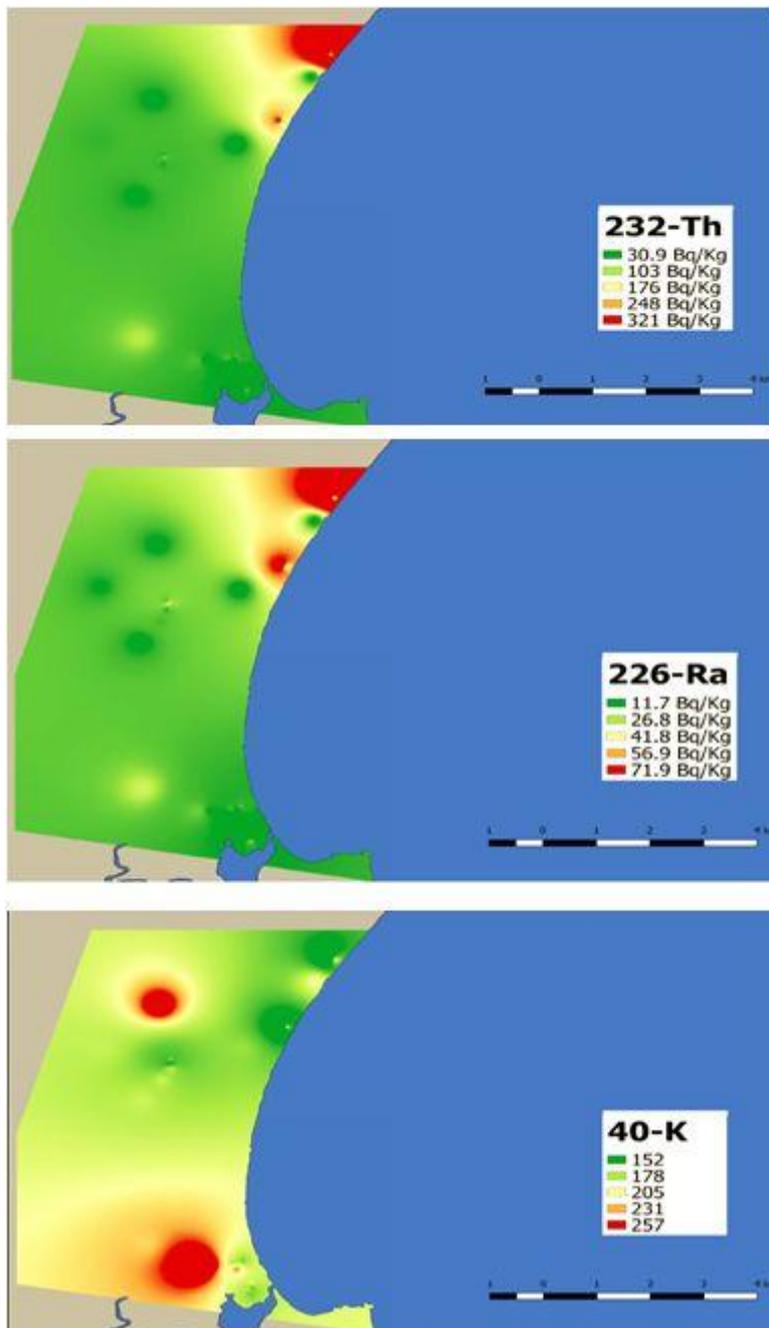


Figura 35: Distribución espacial de la concentración de actividad de ^{232}Th , ^{226}Ra y ^{40}K

La Tabla 21 muestra los promedios de concentración de actividades de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K para las tres zonas de muestreo del área (Balneario Aguas Dulces, Laguna de Briozzo y Balneario Barra de Valizas), de acuerdo a las características de la muestra – arena, sedimento, suelo arenoso y suelo. En la misma tabla se puede apreciar el promedio de concentración de actividad de los mismos radionucleidos en las zonas estudiadas.

Playa/Lugar	Promedio de concentración de actividad ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)		
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
Barra de Valizas – arena	11.85 ± 0.46	32.2 ± 2.5	173.3 ± 8.6
Barra de Valizas – suelo arenoso	10.04 ± 0.29	30.5 ± 2.0	205 ± 11
Barra de Valizas – suelo	18.31 ± 0.63	51.4 ± 3.5	286 ± 15
Promedio Barra de Valizas	13.01 ± 0.49	36.6 ± 2.6	209 ± 11
Laguna de Briozzo – arena	20.49 ± 0.95	48.9 ± 4.6	159.3 ± 7.8
Laguna de Briozzo – sedimento	16.71 ± 0.50	46.9 ± 2.7	182.9 ± 9.5
Promedio Laguna de Briozzo	19.23 ± 0.83	48.8 ± 4.1	170.7 ± 8.6
Aguas Dulces – arena	68.8 ± 1.7	285 ± 17	153.7 ± 8.4
Aguas Dulces – suelo	8.79 ± 0.37	21.4 ± 1.5	299 ± 15
Promedio Aguas Dulces	60.3 ± 1.6	247 ± 16	174.5 ± 9.6
Rango Mundial	17 – 60	11 – 64	140 – 850
Promedio Mundial	35	30	400

Tabla 21: Promedio de de concentración de actividades de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K de acuerdo a las características de la muestra – arena, sedimento, suelo arenoso y suelo –

Las tres zonas analizadas poseen promedio de actividad de ^{232}Th mayor al promedio mundial, mientras que únicamente el Balneario Aguas Dulces posee promedio de concentración de actividad de ^{226}Ra mayor que éste. Esto está de acuerdo con las características geológicas del yacimiento reportadas (Bossi y Navarro 2000). No surgen variaciones de orden en la concentración de actividad de ^{226}Ra y ^{232}Th según el tipo de suelo para el Balneario Barra de Valizas y Laguna de Briozzo, siendo varios órdenes de magnitud mayor la concentración de actividad de ^{226}Ra y ^{232}Th para la arena del Balneario Aguas Dulces respecto al suelo del mismo. Estos resultados están de acuerdo

con las características fisicoquímicas de las muestras antes detalladas, donde las arenas de Aguas Dulces presentan el mayor porcentaje de las fracciones de menor granulometría y mayor concentración de minerales pesados.

Si se comparan los valores de concentración de actividad en suelo de las tres zonas de estudio con los reportes de los suelos en la Región se observa que las concentraciones de actividad de ^{232}Th y ^{226}Ra son del mismo orden que la reportada para suelos en la provincia de Buenos Aires, Argentina (Montes et al. 2016), menores que las concentraciones reportadas para los suelos arcillosos de Piracicaba – Sao Paulo, y mayores que las concentraciones reportadas para los suelos arenosos de la misma región en Brasil (Nisti et al. 2015). Además las actividades promedio para suelo se encuentran en el rango de las actividades reportadas para los suelos de Melo, Salto, Paysandú y Colonia en Uruguay, según reportes del Ministerio de Industria, Energía y Minería (Odino 2010; Montes et al. 2011). Según dicho reporte el suelo de Melo (Cerro Largo, Región Este) presenta mayor concentración de actividad de ^{232}Th que los suelos del litoral del País (Salto, Paysandú y Colonia). Estos resultados para suelos de Uruguay, y algunos de la región y el mundo se resumen en la Tabla 22.

Las concentraciones de actividad para la arena del Balneario Aguas Dulces para ^{232}Th y ^{226}Ra son del mismo orden de las reportadas para Praia Preta, Rio de Janeiro (Freitas y Alencar 2004), Praia Vitoria, Espiritu Santo (Veiga et al. 2006) y Fernando de Noronha (Ribeiro et al. 2016) en Brasil donde yacimiento de características similares han sido reportados. En la Tabla 12 en 4.II.1 se pueden apreciar las concentraciones de actividad reportadas en estas playas.

	Concentración de actividad promedio (Bq.kg ⁻¹)			Referencia
	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	
Buenos Aires – Argentina	22 ± 3	37 ± 4	597 ± 46	Montes et al. 2016
Cerro Largo – Uruguay	19 ± 2	75 ± 7	1054 ± 100	Odino 2010; Montes et al. 2011
Salto – Uruguay	7.2 ± 0.5	11 ± 1	90 ± 5	Odino 2010; Montes et al. 2011
Paysandú – Uruguay	23 ± 2	51 ± 5	440 ± 40	Odino 2010; Montes et al. 2011
Colonia – Uruguay	707-23	8.6-36	255-560	Odino 2010; Montes et al. 2011
Piracicaba – Sao Paulo – Brasil suelo arcilloso	38 ± 1	52 ± 1		Nisti et al. 2015
Piracicaba – Sao Paulo – Brasil suelo arenoso	6 ± 1	14 ± 2		Nisti et al. 2015
Ptolemais, Grecia	27 ± 6	36 ± 5	496 ± 56	Psichoudaki y Papaefthymiou 2008
Rango Mundial	17 – 60	11 – 64	140 – 850	UNSCEAR 2008
Promedio Mundial	35	30	400	UNSCEAR 2008

Tabla 22: Comparación de las concentraciones de actividad de ²²⁶Ra, ²³²Th y ⁴⁰K en suelos de Uruguay, Brasil y Argentina

En la Tabla 23 se muestran los resultados de concentración de actividades de ²²⁶Ra, ²³²Th y ⁴⁰K para los suelos y arenas de Barra de Valizas y Laguna de Briozzo en las dos estaciones muestreadas: otoño y primavera – verano.

Playa	Promedio de concentración de actividad (Bq.kg ⁻¹)		
	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
Valizas – arena otoño	14.69 ± 0.25	39.8 ± 1.4	172.7 ± 3.7
Valizas – arena primavera verano	8.60 ± 0.17	24.37 ± 0.87	177.0 ± 4.6
Valizas – suelo arenoso- otoño	9.02 ± 0.21	24.80 ± 0.95	217.1 ± 6.5
Valizas – suelo arenoso- primavera verano	16.5 ± 0.28	51.0 ± 1.7	182.8 ± 4.8
Valizas – suelo – otoño	16.31 ± 0.40	38.4 ± 1.8	312 ± 11
Valizas – suelo – primavera verano	13.37 ± 0.39	39.8 ± 1.0	303 ± 12
Laguna de Briozzo – arena – otoño	67.9 ± 2.1	131 ± 10	88.9 ± 2.7
Laguna de Briozzo – arena – primavera verano	10.60 ± 0.19	32.1 ± 1.0	178.2 ± 4.6
Laguna de Briozzo – sedimento – otoño	14.92 ± 0.65	43.6 ± 3.7	165.6 ± 4.2
Laguna de Briozzo – sedimento – primavera verano	16.71 ± 0.30	46.9 ± 1.6	193.6 ± 5.8
Rango Mundial	17 – 60	11 – 64	140 – 850
Promedio Mundial	35	30	400

Tabla 23: Concentración de actividades promedio de ²²⁶Ra, ²³²Th y ⁴⁰K según la estación del año

Como se puede apreciar en la mencionada tabla los resultados de concentración de actividad de ²²⁶Ra, ²³²Th y ⁴⁰K en suelos y sedimentos no presentan variaciones estacionales, mientras que la concentración de actividad de los tres radionucleidos en los suelos arenosos y las playas presentan variaciones entre estaciones. Esto era de esperar no sólo por la composición de los mismos, ya que los radionucleidos se adsorben a la materia orgánica, sino por el movimiento superficial de las arenas de las playas y de los suelos arenosos por efecto del viento.

4.III.2.b. Validación de la geometría cilíndrica de 100 mL para cuantificación de los radionucleidos ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K

En la Tabla 24 se muestran los resultados obtenidos para los radionucleidos ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K en el patrón de la IAEA 385, Sedimento del Mar Irlandés, así como los valores reportados por la IAEA.

	Concentración de actividad promedio ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)			
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{238}U
IAEA 385	21.0 ± 1.2	33.7 ± 2.6	620 ± 24	32.7 ± 5.5
IAEA 385 – Valores de Referencia	21.9 ± 0.3	33.7 ± 0.1	607 ± 5	29 ± 1

Tabla 24: Actividades determinadas para los radionucleidos ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K en el patrón de la IAEA 385 y los valores reportados por la IAEA (IAEA 2013)

Los valores obtenidos están de acuerdo con los reportados por la IAEA, esto implica que la geometría cilíndrica de 100 mL es adecuada para realizar las determinaciones, no presentando mayores problemas de difusión del gas ^{222}Rn . El error relativo es mayor al reportado por la IAEA; con el fin de minimizarlo se debería realizar un número mayor de determinaciones o medir mayor tiempo cada muestra. Los límites de detección (LD) para geometría de 100 mL son $1.2 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para ^{226}Ra , $1.0 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para ^{232}Th y $5.0 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para ^{40}K . Valen las mismas consideraciones que en el apartado 4.II.1. para los límites de detección de la concentración de actividad.

En la Tabla 25 se pueden apreciar la comparación de las concentraciones de actividad de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K obtenidas con la geometría Marinelli y con la geometría cilíndrica de 100 mL.

	²²⁶ Ra (Bq.kg ⁻¹)		²³² Th (Bq.kg ⁻¹)		⁴⁰ K (Bq.kg ⁻¹)	
	Marinelli	100 mL	Marinelli	100 mL	Marinelli	100 mL
1- Valizas	24.05 ± 0.91	8.14 ± 0.55	59.7 ± 4.9	24.8 ± 1.6	165.3 ± 4.2	211.2 ± 8.8
2- Valizas	9.91 ± 0.35	10.64 ± 0.60	31.1 ± 1.9	31.1 ± 1.9	163.9 ± 8.5	180.8 ± 7.9
3- Valizas	4.49 ± 0.22	4.49 ± 0.52	8.95 ± 0.71	8.68 ± 0.97	200 ± 10	218.0 ± 9.1
4- Valizas	23.13 ± 0.63	17.36 ± 0.69	70.4 ± 3.8	79.5 ± 4.1	159.1 ± 8.3	166.2 ± 7.3
5- Valizas	11.86 ± 0.39	9.36 ± 0.60	29.0 ± 1.7	24.1 ± 1.6	175.2 ± 9.0	208.3 ± 8.7
6- Valizas	8.09 ± 0.35	10.62 ± 0.67	25.0 ± 1.6	24.3 ± 1.7	262 ± 13	309 ± 12
7- Valizas	10.86 ± 0.41	7.62 ± 0.60	30.6 ± 1.9	23.2 ± 1.6	198 ± 10	196.6 ± 8.6
8- Valizas	11.05 ± 0.40	7.64 ± 0.63	23.3 ± 1.5	21.2 ± 2.6	327 ± 16	293 ± 12
9- Valizas	21.57 ± 0.69	11.99 ± 0.71	53.6 ± 3.2	42.1 ± 2.5	298 ± 15	313 ± 12
10-Valizas	8.10 ± 0.33	7.6 ± 0.58	18.8 ± 1.3	23.2 ± 1.6	191.3 ± 9.9	198.7 ± 8.5
11- Valizas	10.71 ± 0.37	8.02 ± 0.61	25.2 ± 1.6	20.8 ± 1.5	161.6 ± 8.4	184.2 ± 6.2
12- Valizas	5.13 ± 0.25	5.10 ± 0.50	12.01 ± 0.89	7.30 ± 0.93	187.2 ± 9.6	199.6 ± 8.5
13- Valizas	8.76 ± 0.33	5.31 ± 0.50	18.7 ± 1.2	8.76 ± 0.92	158.7 ± 8.3	189.6 ± 8.1
14- Valizas	16.51 ± 0.49	17.06 ± 0.60	54.2 ± 3.0	59.1 ± 3.2	161.8 ± 8.4	182.5 ± 7.9
15- Valizas	3.98 ± 0.21	4.61 ± 0.72	12.54 ± 0.91	16.9 ± 1.3	200 ± 10	200.4 ± 8.5
16- Valizas	6.73 ± 0.29	6.33 ± 0.76	19.4 ± 1.3	14.4 ± 1.7	196 ± 10	157.8 ± 9.4
17- Valizas	20.00 ± 0.72	13.23 ± 0.81	60.1 ± 3.6	40.0 ± 2.5	410 ± 21	348 ± 14
18- Valizas	6.58 ± 0.30	4.32 ± 0.75	9.33 ± 0.76	12.3 ± 1.7	173.8 ± 9.1	162.3 ± 9.8
19- Valizas	16.42 ± 0.52	12.47 ± 0.93	58.9 ± 3.3	65.7 ± 4.0	175.8 ± 9.2	186 ± 10
20- Valizas	32.33 ± 0.85	23.35 ± 0.81	110.6 ± 5.8	80.5 ± 4.3	220 ± 11	197.8 ± 8.5
23-Briozzo	13.71 ± 0.43	6.04 ± 0.53	37.0 ± 2.1	24.4 ± 1.6	150.6 ± 7.9	177.3 ± 7.8
24-Briozzo	7.48 ± 0.31	9.07 ± 0.61	22.6 ± 1.5	24.6 ± 1.7	187.1 ± 9.7	197.0 ± 8.6
25-Briozzo	11.38 ± 0.42	9.39 ± 0.61	24.5 ± 1.6	19.3 ± 1.5	210 ± 11	210.1 ± 9.1
26-Briozzo	16.29 ± 0.51	15.88 ± 0.71	54.1 ± 3.1	42.4 ± 2.5	186.5 ± 9.7	151.1 ± 7.3
27-Briozzo	22.46 ± 0.63	15.69 ± 0.75	62.0 ± 3.4	53.7 ± 3.0	184.0 ± 9.3	192.4 ± 8.5
28-Briozzo	7.82 ± 0.32	7.76 ± 0.57	15.1 ± 1.1	14.3 ± 1.2	178.2 ± 9.6	191.0 ± 8.3
29-Briozzo	11.11 ± 0.39	7.24 ± 0.57	44.3 ± 2.6	19.5 ± 1.4	185.2 ± 9.6	202.2 ± 9.2
30-AD	79.8 ± 1.6	58.0 ± 1.4	355 ± 17	205 ± 10	113.6 ± 6.2	159.1 ± 7.4
31-AD	164.8 ± 3.0	139.7 ± 2.4	749 ± 33	715 ± 27	118.0 ± 6.3	127.1 ± 6.9
32-AD	7.58 ± 0.31	5.86 ± 0.57	20.5 ± 1.3	10.6 ± 1.1	204 ± 10	199.8 ± 8.7
33-AD	25.43 ± 0.68	25.32 ± 0.87	133.5 ± 6.7	105.2 ± 5.4	210 ± 11	235.7 ± 9.9
34-AD	116.2 ± 2.2	116.6 ± 2.0	398 ± 19	376 ± 14	85.3 ± 4.9	120.9 ± 6.4
35-AD	19.15 ± 0.57	15.57 ± 0.76	53.2 ± 3.0	37.6 ± 2.3	191.6 ± 9.8	205.3 ± 8.9
36-AD	8.79 ± 0.37	8.69 ± 0.67	21.35 ± 1.45	21.1 ± 1.6	299 ± 15	256 ± 11

Tabla 25: Comparación de resultados de concentración de actividad de ²²⁶Ra, ²³²Th y ⁴⁰K obtenidas con geometría Marinelli y 100 mL

Las concentraciones de actividad para los tres radionucleidos son del mismo orden en ambas geometrías, mostrando iguales resultados en los casos donde las muestras no presentan problemas de homogeneidad. En los casos donde las muestras presentan mayor concentración de minerales pesados (donde visiblemente se ve la estratificación) aún cuando se realice la homogeneización y el cuarteo de la muestra, se presentan variaciones en las concentraciones en ambas geometrías. Este problema se puede disminuir si analizan varias alícuotas de cada muestra. Para futuras determinaciones es recomendable en los casos donde se pueda obtener suficiente cantidad de muestra como para completar una geometría Marinelli utilizarla, para minimizar el problema de homogeneidad y lograr menores tiempos de medida. En aquellos casos donde las muestras sean escasas, o se desee cuantificar ^{238}U y ^{210}Pb (a través de fotopicos de baja energía) se deberá medir en la geometría de 100 mL haciéndolo por lo menos por duplicado.

4.III.2.c. Evaluación de la concentración de actividad de los radionucleidos naturales ^{238}U y ^{210}Pb con geometría cilíndrica de 100 mL

En la Tabla 26 se muestran las concentraciones de actividad obtenidas para ^{238}U y ^{210}Pb para los suelos, arenas y sedimentos del área Barra de Valizas – Aguas Dulces. Los límites de detección (LD) son de 23 mBq.kg⁻¹ y 4.8 Bq.kg⁻¹ respectivamente. Los resultados se expresan con 95 % de confianza. Valen las mismas consideraciones que en el apartado 4.II.1. para los límites de detección de la concentración de actividad.

Nº muestra	Concentración de actividad (Bq.kg ⁻¹)	
	²³⁸ U	²¹⁰ Pb
1 – Valizas	10.0 ± 3.6	7.3 ± 2.4
2 – Valizas	16.6 ± 3.8	13.1 ± 2.9
3 – Valizas	8.6 ± 2.9	< LD
4 – Valizas	31.2 ± 5.5	17.5 ± 3.8
5 – Valizas	10.1 ± 3.3	9.2 ± 2.6
6 – Valizas	19.1 ± 4.9	18.3 ± 3.3
7 – Valizas	14.0 ± 3.5	11.9 ± 2.5
8 – Valizas	13.3 ± 3.7	17.4 ± 3.3
9 – Valizas	19.1 ± 4.4	29.0 ± 4.6
10 – Valizas	12.5 ± 3.3	13.8 ± 2.6
11 – Valizas	11.1 ± 3.3	< LD
12 – Valizas	6.4 ± 2.8	< LD
13 – Valizas	7.2 ± 2.8	< LD
14 – Valizas	21.0 ± 4.7	21.1 ± 3.9
15 – Valizas	12.9 ± 3.3	6.2 ± 2.2
16 – Valizas	10.8 ± 4.3	< LD
17 – Valizas	22.46 ± 4.4	38.3 ± 5.8
18 – Valizas	9.9 ± 4.4	29.4 ± 6.2
19 – Valizas	24.8 ± 4.5	31.3 ± 6.8
20 – Valizas	37.0 ± 5.6	26.2 ± 4.3
23 – Briozzo	17.1 ± 3.7	10.9 ± 2.5
24 – Briozzo	15.7 ± 3.6	15.2 ± 3.2
25 – Briozzo	14.7 ± 3.5	13.9 ± 2.7
26 – Briozzo	17.4 ± 4.3	15.8 ± 2.9
27 – Briozzo	26.3 ± 4.9	18.2 ± 3.3
28 – Briozzo	11.5 ± 3.2	7.4 ± 2.1
29 – Briozzo	12.9 ± 3.3	11.0 ± 2.7
30 – Aguas Dulces	84.7 ± 9.0	56.5 ± 8.8
31 – Aguas Dulces	12.9 ± 3.3	5.7 ± 2.2
32 – Aguas Dulces	30.5 ± 5.7	24.3 ± 4.5
33 – Aguas Dulces	19.5 ± 4.2	9.2 ± 2.8
34 – Aguas Dulces	14.4 ± 3.6	32.3 ± 5.1

Tabla 26: Concentraciones de actividad de ²³⁸U y ²¹⁰Pb en suelos, arenas y sedimentos del área Barra de Valizas –Aguas Dulces

Si se analizan los resultados en función del tipo de matriz (arena, suelo arenoso, suelo o sedimento), se aprecia que la concentración promedio para ^{238}U es mayor en el suelo y suelo arenoso de Barra de Valizas, que en la arena de la misma playa, mientras que es mayor en la playa que en el suelo de Aguas Dulces. Los sedimentos y la arena de la Laguna de Briozzo no presentan variaciones significativas de concentración de actividad de ^{238}U . Los resultados para el ^{210}Pb muestran una tendencia ligeramente diferente siendo mayor para los suelos que las arenas para Barra de Valizas y Aguas Dulces y no presenta variaciones significativas para los sedimentos y las arenas de la Laguna de Briozzo. Esto está de acuerdo con el contenido de materia orgánica de las muestras, ya que el ^{210}Pb presenta afinidad por la misma (Dörr y Münnich 1989, Ozden et al 2013; Teramage et al. 2015; Vaaramaa et al. 2010). En la Tabla 27 se muestran los promedios de concentración de actividad de ambos radionucleidos por tipo de matriz (suelo, suelo arenoso, arena y sedimento) así como el promedio por lugar de muestreo.

	Concentración de actividad ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)	
	^{238}U	^{210}Pb
Barra de Valizas – arena	10.9 ± 1.2	11.6 ± 1.3
Barra de Valizas – suelo arenoso	18.4 ± 1.6	21.8 ± 1.9
Barra de Valizas – suelo	16.4 ± 2.1	23.4 ± 2.2
Promedio Barra de Valizas	15.26 ± 0.97	19.0 ± 1.1
Laguna de Briozzo – arena	14.3 ± 1.8	11.1 ± 1.3
Laguna de Briozzo – sedimento	19.5 ± 2.5	16.0 ± 4.5
Promedio Laguna de Briozzo	16.9 ± 1.5	13.5 ± 2.3
Aguas Dulces – arena	35.8 ± 2.9	23.9 ± 2.6
Aguas Dulces – suelo	14.3 ± 3.6	32.3 ± 5.1
Promedio Aguas Dulces	25.1 ± 2.3	28.0 ± 3.0

Tabla 27: Promedio de concentración de actividad de ^{238}U y ^{210}Pb según tipo de suelo para el área Barra de Valizas – Aguas Dulces

En la Tabla 28 se comparan los resultados obtenidos en este trabajo con resultados de la región y el mundo.

	Concentración de actividad (Bq.kg ⁻¹)		Referencia
	²³⁸ U	²¹⁰ Pb	
Barra de Valizas	15.26 ± 0.97	19.0 ± 1.1	Este trabajo
Laguna de Briozzo	16.9 ± 1.5	13.5 ± 2.3	Este trabajo
Aguas Dulces	25.1 ± 2.3	28.0 ± 3.0	Este trabajo
Suelo Ptolemais, Grecia	42 ± 11		Psichoudaki y Papaefthymiou 2008
Suelo Slovenia	18 – 90		Kovacs et al. 2013

Tabla 28: Promedio de concentración de actividad de ²³⁸U y ²¹⁰Pb en el área Barra de Valizas – Aguas Dulces y comparación de los mismos con resultados en la región y el mundo

Los resultados obtenidos para ²³⁸U y ²¹⁰Pb están de acuerdo con los resultados obtenidos por espectrometría alfa para ²³⁸U y ²¹⁰Po (radionucleido producto de decaimiento del ²¹⁰Pb y cuyo período de semidesintegración hace que se encuentre en equilibrio secular con éste, ver Figura 5), para las mismas muestras, en el doctorado de la Q. Cristina Bañobre (Bañobre et al. 2017).

Con el fin de estudiar el equilibrio en la serie radiactiva del ²³⁸U se evaluaron las concentraciones de actividad de los radionucleidos ²³⁸U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Pb en la geometría de 100 mL, de manera de realizarlo con exactamente la misma muestra en los casos donde se presentan los problemas de homogeneidad. En la Tabla 29 se presentan las concentraciones de actividad de ²³⁸U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Pb para las arenas, suelos y sedimentos del área Barra de Valizas - Aguas Dulces, así como los cocientes de sus actividades.

Concentración de actividad (Bq.kg ⁻¹)						
	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra/ ²³⁸ U	²¹⁰ Pb/ ²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb/ ²³⁸ U
1	10.0 ± 3.6	8.14 ± 0.55	7.3 ± 2.4	0.81 ± 0.30	0.90 ± 0.30	0.73 ± 0.36
2	16.6 ± 3.8	10.64 ± 0.60	13.1 ± 2.9	0.64 ± 0.15	1.23 ± 0.28	0.79 ± 0.25
3	8.6 ± 2.9	4.49 ± 0.52	< LD	0.52 ± 0.19	-----	-----
4	31.2 ± 5.5	17.36 ± 0.69	17.5 ± 3.8	0.56 ± 0.10	1.01 ± 0.22	0.56 ± 0.16
5	10.1 ± 3.3	9.36 ± 0.60	9.2 ± 2.6	0.93 ± 0.31	0.98 ± 0.28	0.91 ± 0.39
6	19.1 ± 4.9	10.62 ± 0.67	18.3 ± 3.3	0.56 ± 0.15	1.72 ± 0.33	0.96 ± 0.30
7	14.0 ± 3.5	7.62 ± 0.60	11.9 ± 2.5	0.54 ± 0.14	1.56 ± 0.35	0.85 ± 0.28
8	13.3 ± 3.7	7.64 ± 0.63	17.4 ± 3.3	0.57 ± 0.17	2.28 ± 0.47	1.31 ± 0.44
9	19.1 ± 4.4	11.99 ± 0.71	29.0 ± 4.6	0.63 ± 0.15	2.42 ± 0.51	1.52 ± 0.42
10	12.5 ± 3.3	7.6 ± 0.58	13.8 ± 2.6	0.61 ± 0.17	1.82 ± 0.37	1.10 ± 0.36
11	11.1 ± 3.3	8.02 ± 0.61	< LD	0.72 ± 0.22	-----	-----
12	6.4 ± 2.8	5.10 ± 0.50	< LD	0.56 ± 0.22	-----	-----
13	7.2 ± 2.8	5.31 ± 0.50	< LD	0.74 ± 0.30	-----	-----
14	21.0 ± 4.7	17.06 ± 0.60	21.1 ± 3.9	0.81 ± 0.18	1.24 ± 0.23	1.00 ± 0.29
15	12.9 ± 3.3	4.61 ± 0.72	6.2 ± 2.2	0.56 ± 0.22	1.34 ± 0.52	0.75 ± 0.38
16	10.8 ± 4.3	6.33 ± 0.76	< LD	0.59 ± 0.24	-----	-----
17	22.46 ± 4.4	13.23 ± 0.81	38.3 ± 5.8	0.59 ± 0.12	2.89 ± 0.47	1.71 ± 0.42
18	9.9 ± 4.4	4.32 ± 0.75	29.4 ± 6.2	0.44 ± 0.21	6.81 ± 1.86	3.0 ± 1.5
19	24.8 ± 4.5	12.47 ± 0.93	31.3 ± 6.8	0.50 ± 0.10	2.51 ± 0.58	1.26 ± 0.36
20	37.0 ± 5.6	23.35 ± 0.81	26.2 ± 4.3	0.63 ± 0.10	1.12 ± 0.19	0.71 ± 0.16
23	17.1 ± 3.7	6.04 ± 0.53	10.9 ± 2.5	0.350 ± 0.080	1.80 ± 0.44	0.64 ± 0.20
24	15.7 ± 3.6	9.07 ± 0.61	15.2 ± 3.2	0.58 ± 0.14	1.68 ± 0.37	0.97 ± 0.30
25	14.7 ± 3.5	9.39 ± 0.61	13.9 ± 2.7	0.64 ± 0.16	1.48 ± 0.30	0.95 ± 0.29
26	17.4 ± 4.3	15.88 ± 0.71	15.8 ± 2.9	0.91 ± 0.33	0.99 ± 0.17	0.91 ± 0.28
27	26.3 ± 4.9	15.69 ± 0.75	18.2 ± 3.3	0.60 ± 0.11	1.16 ± 0.22	0.69 ± 0.18
28	11.5 ± 3.2	7.76 ± 0.57	7.4 ± 2.1	0.67 ± 0.19	0.95 ± 0.28	0.64 ± 0.26
29	12.9 ± 3.3	7.24 ± 0.57	11.0 ± 2.7	0.56 ± 0.15	1.52 ± 0.39	0.85 ± 0.30
30	84.7 ± 9.0	58.0 ± 1.4	56.5 ± 8.8	0.680 ± 0.070	0.97 ± 0.15	0.67 ± 0.13
31	12.9 ± 3.3	5.86 ± 0.57	5.7 ± 2.2	0.69 ± 0.25	0.97 ± 0.39	0.67 ± 0.35
32	30.5 ± 5.7	25.32 ± 0.87	24.3 ± 4.5	0.83 ± 0.18	0.96 ± 0.18	0.80 ± 0.21
33	19.5 ± 4.2	15.57 ± 0.76	9.2 ± 2.8	0.80 ± 0.18	0.59 ± 0.18	0.47 ± 0.18
34	14.4 ± 3.6	8.69 ± 0.67	32.3 ± 5.1	0.60 ± 0.16	3.72 ± 0.65	2.24 ± 0.66

Tabla 29: Concentraciones de actividad de ²³⁸U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Pb para las arenas, suelos y sedimentos del área Barra de Valizas - Aguas Dulces, y cociente de sus actividades

En la Tabla 30 se muestran los promedios de concentración de actividad de los radionucleidos de la serie de ^{238}U según el tipo de matriz (suelo, suelo arenoso, arena y sedimentos), así como el promedio de los cocientes de actividad.

	Concentración de actividad ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)				
	^{238}U	^{226}Ra	^{210}Pb	$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$
Barra de Valizas - arena	10.9 ± 1.2	9.12 ± 0.20	11.6 ± 1.3	0.83 ± 0.11	1.28 ± 0.29
Barra de Valizas – Suelo arenoso	18.4 ± 1.6	9.43 ± 0.21	21.8 ± 1.9	0.512 ± 0.054	2.31 ± 0.39
Barra de Valizas – suelo	16.4 ± 2.1	9.80 ± 0.36	23.4 ± 2.2	0.597 ± 0.099	2.39 ± 0.53
L. Briozzo – arena	14.3 ± 1.8	7.53 ± 0.28	11.1 ± 1.3	0.528 ± 0.084	1.48 ± 0.35
L. Briozzo - sedimentos	19.5 ± 2.5	13.66 ± 0.40	16.0 ± 4.5	0.70 ± 0.11	1.17 ± 0.47
Aguas Dulces – arena	35.8 ± 2.9	26.19 ± 0.43	23.9 ± 2.6	0.732 ± 0.072	0.91 ± 0.18
Aguas Dulces – suelo	14.3 ± 3.6	8.69 ± 0.67	32.3 ± 5.1	0.61 ± 0.20	3.7 ± 1.5

Tabla 30: Promedio de concentración de actividad de ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , y cocientes de actividades entre ellos

Las muestras en general presentan mayor concentración de actividad de ^{238}U que de ^{226}Ra , dando una relación $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ menor que la unidad, lo que representa un leve desequilibrio entre ambos radionucleidos. Si se analizan las muestras individuales, dado que el intervalo de confianza para la concentración de actividad de ^{238}U es amplio, las concentraciones de actividad en general se solapan, aún cuando la relación $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ es menor que la unidad. Al analizar los promedios por tipo de suelo y lugar de muestreo, se pueden realizar las siguientes observaciones. Se puede considerar que dado el error relativo, Las muestras de arena de Barra de Valizas están en equilibrio, mientras que en los suelos, sedimentos y arena de Aguas Dulces existe un desbalance de ese equilibrio hacia la pérdida de ^{226}Ra .

Si bien en sistemas imperturbados el equilibrio ($^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U} = 1$) es de esperarse, el desequilibrio se puede dar por un enriquecimiento en ^{238}U o por una remoción de ^{226}Ra .

Ambos radionucleidos presentan distinta movilidad, y ella depende de las condiciones ambientales. En ambientes reductores el Uranio se presenta como U^{+4} , el cual es prácticamente inmóvil debido a la formación de compuestos insolubles. En condiciones oxidativas el U^{+4} es oxidado a U^{+6} , con un considerable aumento de la solubilidad. El U^{+6} es reducido por la materia orgánica, el hierro y los sulfitos, y es adsorbido en materia orgánica o minerales superficiales. Entre pH 5 y 8.5 predominan los procesos de adsorción sobre materia orgánica, hierro, óxidos e hidróxidos de manganeso y arcillas (Silva et al. 2006). El U es más soluble (UO_2^{+2} en aguas superficiales) en condiciones oxidativas, alcalinas y en aguas ricas en carbonatos (Papadopoulos et al. 2016).

Por otro lado, el ión Ra^{+2} (único estado de oxidación del Ra) es moderadamente soluble en agua y su solubilidad es proporcional a la salinidad del medio, razón por la cual en la interfase de sedimentos y columna de agua el equilibrio entre ambos puede no alcanzarse, debido al “leaching” del Radio (Cukrov et al. 2009, Silva et al. 2006).

Los suelos y sedimentos estudiados en este trabajo presentan contenido de materia orgánica inferior a 4 % y contenido de arcillas despreciable. Si bien no son suelos ricos en ellos, el desbalance hacia la pérdida de radio es mayor en los mismos que en las arenas estudiadas. La región estudiada es un ecosistema costero atlántico por lo que el contenido de sales es elevado. Es importante destacar además que estamos evaluado un equilibrio secular que para su restauración son necesarios períodos de tiempo de 11200 años, razón por la cual el desbalance se puede haber generado en cualquier momento de este período temporal. Existen reportes de cambios en el nivel del mar durante el Holoceno en Uruguay (Bracco et al. 2011). Es claro que son necesarias mayores evaluaciones para determinar las causas de estas observaciones.

Si se compara con los resultados bibliográficos, existen reportes de ambos desequilibrios.

El desequilibrio hacia la pérdida de ^{226}Ra ($^{226}Ra/^{238}U < 1$) también se observa por ejemplo, en los suelos de Grecia (Psychoudaki y Papaefthymiou 2008), donde la relación $^{226}Ra/^{238}U$ promedio es de 0.67 ± 0.15 . Según los mismos autores este desequilibrio se debe a la mayor movilidad del radio en el ambiente debido a la mayor solubilidad comparada con el U^{4+} , y puede ser atribuida además a la separación entre ^{230}Th (padre del ^{226}Ra) y el ^{238}U (Psychoudaki y Papaefthymiou 2008). Las arenas de las playas Kavala y Sithonia en Grecia presentan en su mayoría $^{226}Ra/^{238}U < 1$, debido a la mayor movilidad y remoción del ^{226}Ra , aunque según los autores lo opuesto también

puede ser posible (Papadopoulos et al. 2016). En Brasil, los sedimentos del río Cubatao (río muy perturbado por actividades industriales, cuyo contenido de materia orgánica varía entre 1.2 y 2.9 %) presentan $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ entre 0.62 y 0.90 (Silva et al. 2006), relaciones del orden de las encontradas en los sedimentos de la Laguna de Briozzo. En Croacia en los sedimentos del río Krka este desequilibrio se ha observado en los sedimentos marinos y de salinidad media, con una relación de 1.56 ($^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$) para sedimentos no contaminados de la costa del mar Adriático (Cukrov et al. 2009).

El desequilibrio hacia la pérdida de ^{238}U ($^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U} > 1$) ha sido reportado en suelos de India (Lenka et al. 2009), Slovenia (Kovacs et al. 2013) y España (Charro et al. 2013)

Por otro lado el equilibrio entre el ^{210}Pb y el ^{226}Ra únicamente se da en las arenas de Barra de Valizas y Aguas Dulces donde el contenido de materia orgánica es bajo y no se fija el ^{210}Pb que proviene de la deposición de los productos de decaimiento del gas ^{222}Rn . En las demás matrices: suelos, suelos arenosos y sedimentos, siempre existe un exceso de ^{210}Pb , proveniente de la desintegración del gas ^{222}Rn y sus productos de decaimiento.

4.III.2.d Evaluación de la concentración de actividad del radionucleido ^{137}Cs

Las muestras de suelo de Barra de Valizas y Aguas Dulces y de sedimento de Laguna de Briozzo fueron analizadas por espectrometría gamma con geometría de 100 mL con un tiempo muerto de 0.25 – 0.34 %; en la Tabla 31 se muestran los resultados obtenidos con una confianza de 67 % . El límite de detección para ^{137}Cs es de 15 mBq. Como se puede apreciar las actividades presentan errores relativamente grandes por lo que habría que mejorar la estadística, aumentando el tiempo de medida o el número de las mismas. Los valores poseen significación estadística si se consideran los promedios por zona. De esta manera los sedimentos de la Laguna de Briozzo presentan mayor concentración de actividad de ^{137}Cs que los suelos de Barra de Valizas.

Nº muestra	Lugar	Concentración de actividad ^{137}Cs (Bq.kg ⁻¹)
6	Barra de Valizas	0.30 ± 0.15
7	Barra de Valizas	0.12 ± 0.11
8	Barra de Valizas	0.36 ± 0.15
9	Barra de Valizas	0.64 ± 0.23
10	Barra de Valizas	0.18 ± 0.11
16	Barra de Valizas	0.20 ± 0.15
17	Barra de Valizas	0.68 ± 0.24
Promedio	Barra de Valizas	0.250 ± 0.17
21	Lag. de Briozzo	0.74 ± 0.25
22	Lag. de Briozzo	1.20 ± 0.37
23	Lag. de Briozzo	0.43 ± 0.16
24	Lag. de Briozzo	0.20 ± 0.12
25	Lag. de Briozzo	1.13 ± 0.36
26	Lag. de Briozzo	0.29 ± 0.14
28	Lag. de Briozzo	1.28 ± 0.39
Promedio	Lag. de Briozzo	0.75 ± 0.28
36	Aguas Dulces	1.05 ± 0.34

Tabla 31: Concentración de actividad de ^{137}Cs en muestras de suelo de Barra de Valizas y Aguas Dulces y sedimento de Laguna de Briozzo

La presencia de ^{137}Cs se identificó en todas las muestras de suelo de Barra de Valizas, con excepción de las muestras 19 y 20 las cuales presentan gran porcentaje de arena y contenido de materia orgánica menor al 1 %, y no se identificó en las muestras de arena del mismo balneario. También se identificó la presencia de ^{137}Cs en todas muestras de la Laguna de Briozzo y en la muestra de suelo de Aguas Dulces denominado 36.

El ^{137}Cs es un radionucleido artificial que se encuentra en la naturaleza debido a los ensayos nucleares y a las armas y los accidentes de las centrales nucleares como Chernobyl y Fukushima. En el hemisferio Sur, el mayor aporte se debe a los ensayos nucleares llevados a cabo en en las islas de Malden, Christman y Marshall, en los atolones de Mururoa, Fangataufa y Bikini, y en Emu y Maralinga en Australia. Debido a la composición de los sedimentos y de los suelos el ^{137}Cs difunde en ellos más

lentamente que en las arenas razón por la cual se detecta – en pequeñas cantidades – en alguna de las muestras estudiadas.

La concentración de actividad de ^{137}Cs en la zona es del mismo orden de las reportadas para los suelos de Colonia en Uruguay y otros suelos en América del Sur, así como para sedimentos Antárticos, y menor que la reportada para los suelos de Europa, como se puede apreciar en la Tabla 32. Esto está de acuerdo con los eventos ocurridos en ambos hemisferios y con la distribución del fallout en el planeta (UNSCEAR 2000)

Lugar	Concentración de actividad (Bq.kg⁻¹) ^{137}Cs	Referencia
Barra de Valizas	0.250 ± 0.17	Este trabajo
Lag. de Briozzo	0.75 ± 0.28	Este trabajo
Colonia – Uruguay	$< 0.5 - 3.2$	Odino et al. 2017
Buenos Aires – Argentina	1.1 ± 0.9	Montes et al. 2016
Fernando de Noronha –Brasil	0.4 - 2.4	Ribeiro et al. 2016
Lombardía, Italia	1.1-241	Guidotti et al.2015
Texas – Estados Unidos	3.7 ± 0.9	Hannan et al. 2015
Isla Rey Jorge, Antártida	0.84-7.09	Alves de Lima Ferreira et al. 2013

Tabla 32: Concentración de actividad de ^{137}Cs en el área Barra de Valizas – Aguas Dulces y comparación con resultados reportados en la región y el mundo

Se atribuye entonces el ^{137}Cs determinado al fallout general del Hemisferio Sur y no a eventos puntuales de contaminación artificial cercanos.

4.III.3. Evaluación de radionucleidos presentes en el compartimento agua

4.III.3.a Evaluación de la actividad alfa y beta total

En la Tabla 33 se presentan los resultados de actividad alfa y beta total obtenidos en el sistema CANBERRA LB4200 para las aguas de pozos privados y de suministro estatal (agua potable) de Aguas Dulces y Valizas, así como para el agua de la Laguna de Briozzo. El límite de detección es de 0.021 Bq.l^{-1} para la determinación de emisores alfa y de 0.037 Bq.l^{-1} para la determinación de emisores beta.

Nº muestra	Lugar	Tipo de agua	α total (Bq.l^{-1})	β total (Bq.l^{-1})
H1	B. Valizas	Pozo privado	< LD	0.183 ± 0.025
H2	B. Valizas	Pozo privado	< LD	0.154 ± 0.051
H3	B. Valizas	Pozo privado	< LD	0.201 ± 0.022
H4	B. Valizas	Pozo privado	< LD	0.198 ± 0.020
H5	B. Valizas	Pozo privado	< LD	0.172 ± 0.034
H6	B. Valizas	Pozo privado	< LD	0.194 ± 0.021
H7	B. Valizas	Pozo privado	< LD	0.187 ± 0.024
H8	B. Valizas	Pozo privado	< LD	0.199 ± 0.019
H9	B. Valizas	Pozo privado	< LD	0.169 ± 0.071
H10	B. Valizas	Suministro estatal	< LD	0.148 ± 0.017
H11	B. Valizas	Pozo privado	< LD	0.105 ± 0.015
H12	B. Valizas	Pozo privado	< LD	0.092 ± 0.014
H13	L. Briozzo	Superficial	< LD	0.064 ± 0.012
H14	L. Briozzo	Superficial	< LD	0.062 ± 0.012
H15	L. Briozzo	Superficial	< LD	0.061 ± 0.012
H16	L. Briozzo	Superficial	< LD	0.054 ± 0.011
H17	A.Dulces	Pozo privado	< LD	< LD
H18	A.Dulces	Pozo privado	< LD	< LD
H19	A.Dulces	Suministro estatal	< LD	< LD

Tabla 33: Actividad alfa y beta total en aguas de pozos privados y suministro estatal en Barra de Valizas y Aguas Dulces, así como de la Laguna de Briozzo

Como se puede apreciar la actividad alfa total es menor que el límite de detección, es decir menor a 0.021 Bq.l^{-1} , mientras que la actividad beta es mayor que el límite de detección para las aguas de Barra de Valizas (pozo y suministro público) y Laguna de Briozzo, y menor que éste para las aguas de Aguas Dulces (suministro público y pozo).

Dado el proceso experimental desarrollado, que implica la evaporación de las muestras por tratamiento térmico, no se están cuantificando radionucleidos volátiles, como ^3H , ^{210}Po y ^{137}Cs (Jobbçagy et al. 2010), por lo que la actividad alfa y beta total puede estar subestimada, de todas maneras los valores obtenidos son varios órdenes de magnitud menores a niveles de referencia recomendados como seguros.

En la Tabla 34 se muestra la actividad alfa y beta total promedio para Laguna de Briozzo, y Barra de Valizas; en este último caso se muestra el promedio de las perforaciones privadas y por separado el del suministro público. En la Tabla también se comparan los resultados con los obtenidos por otros investigadores en el mundo.

Los valores obtenidos para las cachimbas de Barra de Valizas son del orden de la actividad alfa y beta total obtenidos en un muestreo primario de aguas de cachimba del mismo balneario. La actividad alfa y beta total promedio en esa campaña de muestreo fue de $0.11 \pm 0.03 \text{ Bq.l}^{-1}$, la misma se cuantificó utilizando para su determinación un Analyzing miniscaler Ratemeter modelo PRS-5/STB-3 (Noguera et al. 2013).

La actividad beta total es del mismo orden de las obtenidas para aguas de Sao Paulo, y Poço de Caldas, Brasil (Bonotto et al. 2009). Vale la pena recordar que Poço de Caldas es una zona de alta radiación de fondo. Los resultados de actividad beta total se encuentran comprendidos en el rango de actividad de las reportadas para aguas de Italia (Desideri et al. 2007), España (Duenas et al. 1998), y Turquía (Turhan et al. 2013) y menor que Arabia Saudita (Shabana et al. 2014).

Lugar	α total (Bq.l ⁻¹)	β total (Bq.l ⁻¹)	Referencia
Laguna de Briozzo	< 0.021	0.060 ± 0.012	Este trabajo
Barra de Valizas – pozos privados	< 0.021	0.168 ± 0.033	Este trabajo
Barra de Valizas – suministro público	< 0.021	0.148 ± 0.017	Este trabajo
Arabia Saudita – pozos	0.17 - 5.41	0.48 – 5.16	Shabana et al. 2014
Arabia Saudita – Agua de riego	3.15 ± 0.26	5.39 ± 0.44	Alkhomashi et al. 2016
Italia – agua potable	0.0104 – 0.25		Jia et al. 2009
Italia – agua potable	< 0.01818-0.12818	< 0.04157-0.25859	Desideri et al. 2007
España – manantiales (spa)	< 0.20 - 2.40	< 0.050 – 5.8	Duenas et al. 1998
Hungría – manantial	0.026 – 1.749	0.033 – 2.015	Jobbágy et al. 2011
Turquía - agua superficial	0.080 – 0.380	0.120 – 3.470	Turhan et al. 2013
Bosnia y Herzegovina – Río	0.026 – 0.055	0.014 – 0.342	Wallove et al. 2016
Sao Paulo, Brasil – manantiales (spa)	0.001 – 0.4	0.12 – 0.86	Bonotto et al. 2009
Poço de caldas, Brasil – manantiales (spa)	< 0.001	0.21- 0.31	Bonotto et al. 2009
Río Grande do Norte – Brasil – agua superficial	0.0028 – 0.354	0.050 – 0.58	Malanca et al. 1998
Bahía – Brasil - aguas superficiales	0.02 – 0.80	0.010 – 3.0	Silva y Pecequilo 2011
Venezuela –Agua potable	0.07-0.54		Sajo-Bohus et al. 1996

Tabla 34: Promedio de Actividad alfa y beta total del área Barra de Valizas – Aguas Dulces y su comparación con otros reportes a nivel mundial

Todos los valores obtenidos están por debajo de los niveles de referencia recomendados como seguros para su uso como agua potable por la Organización Mundial de la Salud (OMS); 0.5 Bq.l⁻¹ para actividad alfa total y 1 Bq.l⁻¹ para actividad beta total (WHO 2011). Todas las aguas analizadas cumplen a nivel radiológico con la normativa nacional para agua potable, la cual recomienda una suma de actividad alfa y beta total menor a 1Bq.l⁻¹ (UNIT 2008).

4.III.3.b. Evaluación de la concentración de actividad de los radionucleidos ^{226}Ra , ^{228}Ra y ^{210}Pb

Las concentraciones de actividad de ^{226}Ra , ^{228}Ra y ^{210}Pb de las aguas de la Laguna de Briozzo y suministro público de Barra de Valizas son menores a los límites de detección en todas las muestras evaluadas. El límite de detección para ^{226}Ra es de 2.0 mBq.l^{-1} , mientras que el límite de detección para ^{228}Ra y ^{210}Pb es de 37.0 mBq.l^{-1} . Todas las muestras fueron medidas con un rendimiento químico mayor al 90 %.

Estos resultados obtenidos merecen algunas observaciones. La concentración de actividad beta total determinada en la sesión anterior puede corresponder mayoritariamente al radionucleido natural ^{40}K , ya que este radionucleido es de los más abundantes en agua (Bonotto y Bueno 2008).

El método de cuantificación implica la eliminación del material particulado por filtración. Dado que los radionucleidos determinados tienen afinidad por materia orgánica habría que cuantificar la concentración de actividad de los mismos en el material particulado, para dar más exactitud al estudio compartimental.

En lo que respecta a la dosis por ingesta, este pretratamiento no afecta el estudio debido a que durante el proceso de potabilización se elimina el material particulado.

Todos los resultados obtenidos están por debajo de los niveles de referencia recomendados por OMS como seguros en agua potable (WHO 2011). Las concentraciones de actividad no ameritan mayores determinaciones para evaluación de dosis por ingesta, pero sí es interesante la evaluación de transferencia entre compartimentos. Como trabajo futuro es interesante la evaluación de estos y otros radionucleidos (^{238}U , ^{234}U y ^{232}Th) por otros métodos analíticos de manera de obtener menores límites de detección, por ejemplo por espectrometría alfa y centelleo líquido.

Si se analizan resultados para los mismos radionucleidos en agua potable por ejemplo de Italia (Jia et al. 2009), e incluso los resultados reportados por UNSCEAR para aguas de consumo en diversas partes del mundo (UNSCEAR 2008), se encuentra que los valores reportados están en el orden del límite de detección de la metodología utilizada

en esta Tesis. En el caso de aguas subterráneas, por ejemplo para el acuífero Guaraní (acuífero que abarca parte del territorio nacional), se han reportado concentraciones de actividad de ^{226}Ra varios órdenes de magnitud mayores a las reportadas para agua potable y aguas naturales en la región (Bonotto 2004; Bonotto y Bueno 2008). En la Tabla 35 se comparan los resultados obtenidos para las aguas superficiales de la Laguna de Briozzo con algunos resultados de literatura obtenidos para aguas naturales (superficiales y de acuífero). En el Tabla 36 se muestran los resultados obtenidos de concentración de actividad de ^{226}Ra , ^{228}Ra y ^{210}Pb en el agua para suministro público de Barra de Valizas (agua potable) con resultados de literatura en la región y el mundo.

Lugar	^{226}Ra (mBq.l⁻¹)	^{228}Ra (mBq.l⁻¹)	^{210}Pb (mBq.l⁻¹)	Referencia
Laguna de Briozzo	< 2.1	< 36.9	< 36.9	Este trabajo
Grecia – Lagos para suministro público	0.19 – 17.27			UNSCEAR 2008
Acuífero Guaraní – Río Grande del Sur - Brasil	40-140	< 2.90 – 2.72		Bonotto 2004
Aguas Termales Poço de Caldas – Brasil	3.377 – 6.959	6.5 – 10		De Carvalho et al. 2015
Sur de Brasil – aguas subterráneas	< 10 – 190	< 15 – 190	< 10 -610	Godoy y Godoy 2006
Río Bosna - Bosnia y Herzegovina	16 – 24	<3 -18		Wallove et al. 2016

Tabla 35: Comparación de la concentración de actividad de ^{226}Ra , ^{228}Ra y ^{210}Pb en las aguas superficiales de la Laguna de Briozzo con otras aguas naturales (superficiales y de acuífero) en la región y el mundo

Lugar	^{226}Ra (mBq.l⁻¹)	^{228}Ra (mBq.l⁻¹)	^{210}Pb (mBq.l⁻¹)	Referencia
Barra de Valizas	< 2.1	< 36.9	< 36.9	Este trabajo
Argentina	< 0.3 – 22			UNSCEAR 2008
Brasil - aguas minerales	8.0 – 83	12 – 385	20 – 102	UNSCEAR 2008
Italia	0.50 – 60.8	0.10 – 25.7	0.191 – 15.1	Jia et al. 2009
Italia	1.70 – 15.31			Desideri et al. 2007
España	1.3 – 2.2	< 84.5	0.23 -59	UNSCEAR 2008
Estados Unidos	0.4 – 1.8	0 – 0.5	0.1 – 1.5	UNSCEAR 2008
Alemania	0.5 – 32	0.5 – 23	0.2 – 170	UNSCEAR 2008

Tabla 36: Comparación de la concentración de actividad de ^{226}Ra , ^{228}Ra y ^{210}Pb en agua de suministro público (potable) de Barra de Valizas con otras aguas potables en la región y el mundo

4. IV. Distribución de radionucleidos en el área Barra de Valizas – Aguas Dulces

Se determinó la transferencia de los radionucleidos entre los compartimentos suelo y vegetación en la Laguna de Briozzo. No fue posible evaluar la transferencia entre los compartimentos suelo y agua ya que la concentración de actividad de los radionucleidos evaluados en agua está por debajo de los límites de detección del método.

Los radionucleidos ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{232}Th , ^{40}K y ^{137}Cs fueron cuantificados en muestras de suelo y carqueja de la Laguna de Briozzo y sus coeficientes de transferencia (TF) calculados. Los resultados promedio de concentración de actividad y coeficiente de transferencia se muestran en la Tabla 37. Los límites de detección (LD) para las muestras de carqueja son 1 Bq.kg⁻¹ para ^{238}U , 3.2 Bq.kg⁻¹ para ^{226}Ra , 13.6 Bq.kg⁻¹ para ^{210}Pb , 21 Bq.kg⁻¹ para ^{232}Th , 4.2 Bq.kg⁻¹ para ^{40}K y 0.3 Bq.kg⁻¹ para ^{137}Cs . Valen las mismas consideraciones que en el apartado 4.II.1. para los límites de detección de la concentración de actividad

Concentración de actividad (Bq.kg ⁻¹)	Suelo	Carqueja	TF
^{238}U	16.9 ± 2.3	< LD	---
^{226}Ra	13.21 ± 0.43	< LD	---
^{210}Pb	25.2 ± 2.5	58.7 ± 6.1	2.33 ± 0.47
^{232}Th	35.7 ± 1.2	< LD	---
^{40}K	196.8 ± 3.5	238 ± 11	1.209 ± 0.086
^{137}Cs	1.34 ± 0.26	1.82 ± 0.65	1.57 ± 0.73

Tabla 37: Promedio de concentración de actividad de los radionucleidos ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{232}Th , ^{40}K y ^{137}Cs en muestras de suelo y carqueja, y los correspondientes coeficientes de transferencia

Los radionucleidos ^{238}U , ^{226}Ra y ^{232}Th se encuentran por debajo del límite de detección en todas las muestras de carqueja analizadas, es decir inferior a 1 Bq.kg⁻¹, 3.2 Bq.kg⁻¹ y 21 Bq.kg⁻¹ respectivamente. Estas concentraciones de actividad son del orden de las reportadas para otras plantas medicinales – utilizadas en tisanería - (Desideri et al. 2010; Djelic et al 2016). Para evaluar la concentración de actividad de estos radionucleidos, así como su factor de transferencia es necesario utilizar otras técnicas

analíticas con límites de detección menores, como puede ser espectrometría alfa. El utilizar otras técnicas como la espectrometría alfa para radionucleidos como ^{238}U , ^{226}Ra y ^{232}Th va a permitir determinar si existe transferencia desde el suelo a la planta y la relevancia de la misma.

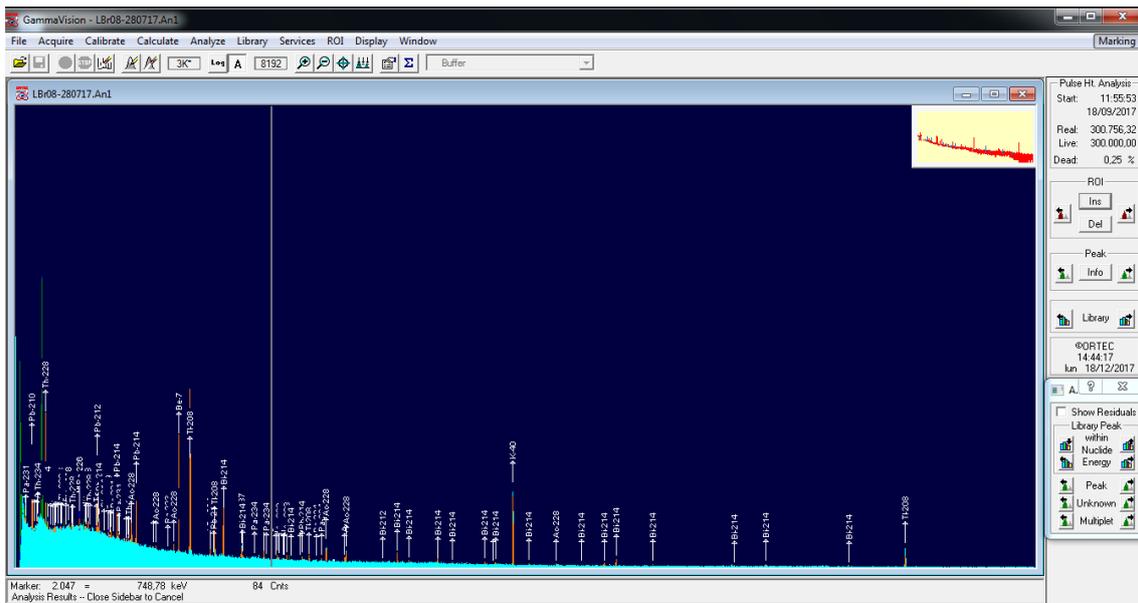
La concentración de actividad del ^{40}K y del ^{137}Cs es de órdenes similares entre vegetación y suelo.

En la absorción vía sistema radicular, no existe diferencia entre los distintos isótopos de un elemento, los elementos K y Ca son nutrientes vitales que se transfieren desde el suelo a las diferentes partes de las plantas, y junto a ellos otros elementos y radionucleidos con química similar tales como ^{137}Cs y ^{226}Ra (Asaduzzman et al. 2014). El factor de transferencia obtenido para ^{40}K es del mismo orden de los reportados para otras Asteráceas como ser *Matricaria chamomilla L*, cuyo TF es de 1.8887 (Djelic et al. 2016).

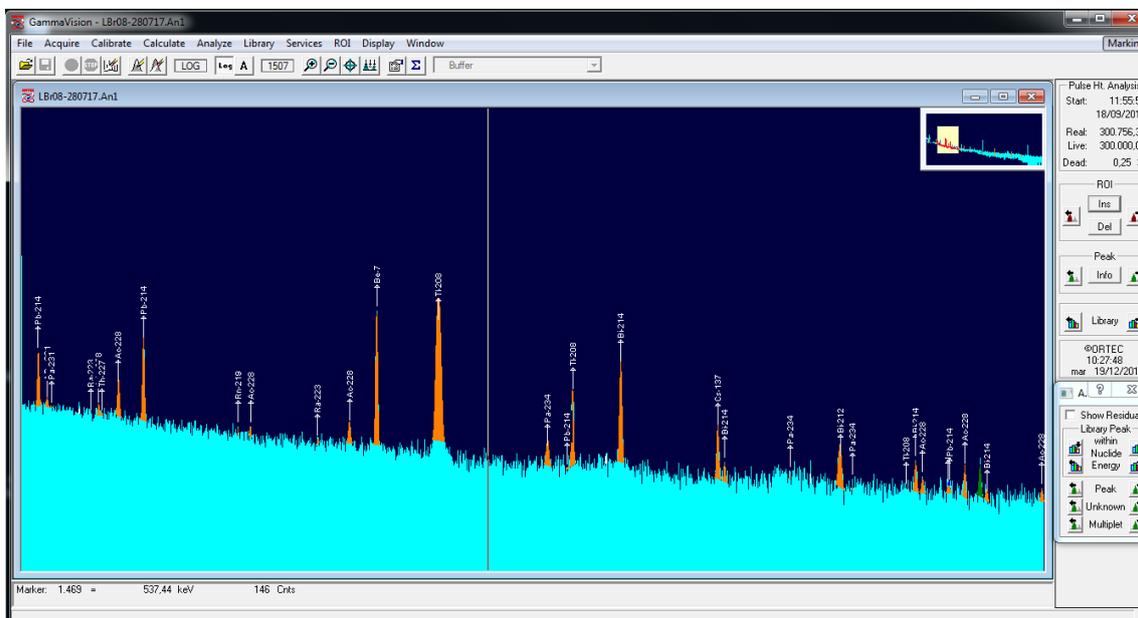
La concentración de actividad de ^{210}Pb es el doble en las plantas de carqueja que la que se determinó en los suelos, pero hay que tener en cuenta que parte del ^{210}Pb determinado en la vegetación puede ser aporte de ^{210}Pb depositado proveniente del decaimiento del gas ^{222}Rn . Según reportes la transferencia de ^{210}Pb vía raíces de la planta es menor que por deposición atmosférica en partes aéreas (Al-Masri et al. 2008). Por otra parte, la transferencia real del suelo se debe determinar en función de las estructuras botánicas de las plantas, los metabolismos, además de la composición del suelo, la biodisponibilidad para la planta, la textura del suelo, la acidez, la materia orgánica, la edad de la planta entre otras. Reportes similares a los de este trabajo se han obtenido para otras especies vegetales, por ejemplo para *Rosmarinus officinalis* (Romero) cuya concentración de actividad de ^{210}Pb es de $39.0 \pm 0.7 \text{ Bq.kg}^{-1}$ y *Salvia officinalis* (Salvia), cuya concentración de actividad de ^{210}Pb es de $73.2 \pm 1.3 \text{ Bq.kg}^{-1}$ en Siria (Al-Masari et al. 2015).

En las muestras de carqueja se puede identificar además el radionucleido cosmogénico ^7Be (período de semidesintegración 53,33 días), con una emisión gamma en 477.6 keV (IAEA 2017), producido por reacciones nucleares de la radiación cósmica con nitrógeno y oxígeno atmosférico (Gilmore 2008). La concentración de actividad promedio de ^7Be

en las muestras de carqueja es de $41.9 \pm 6.3 \text{ Bq.kg}^{-1}$. La presencia de ^7Be es detectable en los suelos de la Laguna de Briozzo pero mostrando un fotopico mucho menos definido cómo se puede apreciar en los espectros que se muestran en las Figuras 36 y 37. No se calculó la concentración de actividad en suelo debido a que el error en la determinación es demasiado elevado.

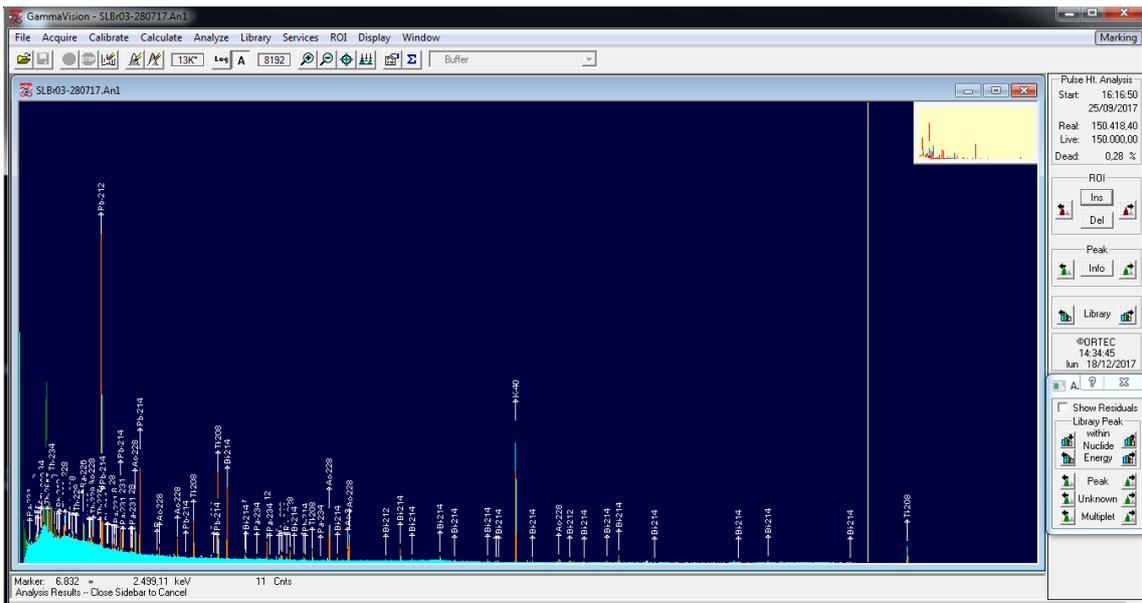


a

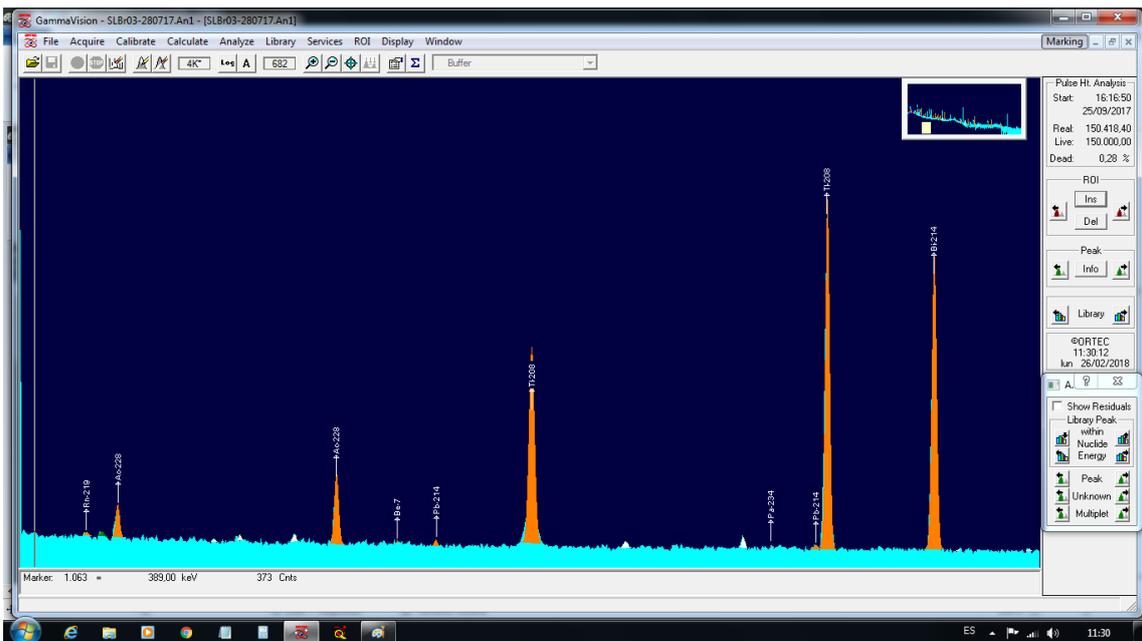


b

Figura 36: Espectro gamma de muestra representativa de carqueja de la Laguna de Briozzo (a) espectro en el rango total de energía de trabajo, (b) espectro gamma en el rango de energía de emisión del ^7Be



a



b

Figura 37: Espectro gamma de una muestra representativa del suelo de Laguna de Briozzo, lugar de crecimiento de la carqueja cuyo espectro se muestra en la Figura anterior. (a) espectro en el rango total de energía de trabajo, (b) espectro gamma en el rango de energía de emisión del ^7Be

La concentración promedio de ^7Be en aire es de 3 mBq.m^3 , según lo reportado por UNSCEAR, y alcanza la corteza terrestre a través de la lluvia, contribuyendo en una dosis efectiva anual de $0.03 \text{ }\mu\text{Sv}$ por la ingesta de vegetales frescos (UNSCEAR 2008). La carqueja se consume únicamente en infusión (de 1 a 5 gramos de material vegetal seco en infusión). Se ha realizado una infusión y espectrometría gamma a la misma; encontrándose todos los radionucleidos por debajo del límite de detección.

Por decaimiento del ^7Be se obtiene ^7Li , el ^7Li es estable y posee diversos efectos metabólicos (Lazarus 1986). La cantidad de Litio producida por decaimiento del ^7Be es del orden de los femtogramos por kilo de material vegetal seco. Dada la concentración de actividad de ^7Be y principalmente debido a la forma y frecuencia de consumo de la carqueja, el ^7Li producido no representa ningún desbalance en las concentraciones de este metal, por el consumo de infusión de carqueja.

Futuras determinaciones deben ser enfocadas en ampliar las caracterizaciones de los suelos, ampliar las especies vegetales a estudiar, así como los mecanismos a través de los cuales los distintos radionucleidos son incorporados por las plantas, ya sea desde el suelo, o por sus partes aéreas.

4.V. Evaluación de riesgo radiológico de la población permanente y turistas (aspectos sociales) en el área Barra de Valizas – Aguas Dulces

4.V.1. Riesgo radiológico de irradiación externa debido a la presencia de los radionucleidos naturales en suelo y/o arena

Con los resultados de concentración de actividad promedio de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K fueron calculados los índices de riesgo descritos en 3.V.1. Los resultados para la población y los turistas se muestran en la Tabla 38.

Lugar	D (nGy.h ⁻¹)	Población		Turistas	
		AEDE (μSv.yr ⁻¹) <i>f</i> =0.2	AEDE (μSv.yr ⁻¹) <i>f</i> =0.5	AEDE (μSv.yr ⁻¹) 2 meses	AEDE (μSv.yr ⁻¹) 15 días
Barra de Valizas	38.14 ± 0.40	46.77 ± 0.50	116.9 ± 1.2	23.39 ± 0.25	6.407 ± 0.068
Laguna de Briozzo	43.45 ± 0.59	53.28 ± 0.72	133.2 ± 1.8	26.64 ± 0.36	7.299 ± 0.098
Aguas Dulces	116.6 ± 2.1	143.0 ± 2.5	357.6 ± 6.3	71.5 ± 1.3	19.60 ± 0.35
Promedio Mundial	57	70			

Tabla 38: Tasa de dosis absorbida y Dosis equivalente efectiva anual para los habitantes permanentes y turistas de las tres zonas del área Barra de Valizas – Aguas Dulces

La Tasa de dosis absorbida promedio es mayor que el promedio mundial únicamente para el Balneario Aguas Dulces. Si se considera un factor de ocupación de 20 % recomendado por UNSCEAR los habitantes del Balneario Aguas Dulces reciben en promedio mayor dosis equivalente efectiva anual por los radionucleidos terrestres que el promedio de la población mundial (UNSCEAR 2008). Si se consideran además los hábitos de los pobladores, y se asume un factor de ocupación mayor (50 %), la dosis equivalente efectiva anual promedio de los pobladores de toda el área supera al promedio mundial. Por otro lado la dosis equivalente efectiva anual promedio de los turistas no supera el promedio mundial, siendo mayor obviamente para los turistas de

temporada que para los quincenales, alcanzando el promedio mundial para los turistas de temporada del Balneario Aguas Dulces. De todas maneras en ningún caso se supera los máximos valores de tasa dosis recomendados para exposición ya existente para público en general de 1 mSv.yr^{-1} por ICRP (ICRP 2007). Los valores de tasa de dosis absorbida y de dosis equivalente efectiva anual son del mismo orden de los reportados para los Balnearios de Praia Preta (Freitas y Alencar 2004) y Fernando de Noronha en Brasil (Ribeiro et al. 2016), para la región de Douala en Camerún (Guembou Shouop et al. 2017), Gran Canaria en España (Arnedo et al. 2017) e India (Bengotra et al. 2016), y menores que los reportados para las Playas brasileiras de Camburi, Vitoria y Guarapari (Aquino 2010; Barros y Pecequillo 2014). Los resultados de las mencionadas playas se muestran en la Tabla 15 de la sección 4.II.2.

Los resultados de dosis equivalentes efectivas anuales promedio obtenidos no ameritan realizar mayores recomendaciones a la población, ni a las autoridades; de todas maneras es aconsejable en el caso de los niños pequeños evitar el contacto prolongado con las zonas visiblemente negras de la arena de playa con el fin de minimizar la tasa de exposición.

4.V.2. Riesgo radiológico de irradiación interna (contaminación) debido a la presencia de los radionucleidos naturales en el agua de consumo

Todos los valores obtenidos están por debajo de los niveles guía como seguros para su uso como agua potable por la Organización Mundial de la Salud (OMS); 0.5 Bq.l^{-1} para actividad alfa total y 1 Bq.l^{-1} para actividad beta total. Estos valores de referencia están determinados para obtener una dosis menor a 0.1 mSv durante un año de consumo del agua potable, sin importar el origen de los radionucleidos. Estos valores no representan ningún riesgo adicional a la salud de acuerdo a OMS.(WHO 2011).

Todas las aguas analizadas, cumplen a nivel radiológico con la normativa nacional para agua potable, la cual recomienda una suma de actividad alfa y beta total menor a 1 Bq.l^{-1} (UNIT 2008).

La concentración de actividad de ^{226}Ra , ^{228}Ra y ^{210}Pb es varios órdenes de magnitud menor a los valores de referencia recomendados por la organización mundial de la salud. Estos valores de referencia 1 Bq.l^{-1} para ^{226}Ra , y 0.1 Bq.l^{-1} para ^{228}Ra y ^{210}Pb ,

son tales que una ingesta de 2 litros de agua por día, durante un año, dará una dosis efectiva de 0.1 mSv (WHO 2011).

Los resultados de actividad alfa y beta total así como la concentración de actividad de los distintos radionucleidos evaluados no representan riesgo para la salud de la población y no ameritan realizar mayores recomendaciones.

4.V.3. Evaluación de riesgo radiológico debido a los materiales de construcción (aspectos sociales y laborales)

Los valores de concentración de actividad de los radionucleidos ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K para todas las muestras de arena analizadas son menores a los valores de referencia de la normativa europea Directive 2013/59 (Council Directive 2013), la cual recomienda un valor máximo de $1\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ de los radionucleidos ^{226}Ra y ^{232}Th y hasta $10\text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ de ^{40}K para uso en viviendas. Esto implica que si se utilizaran las arenas de la zona, (nuevamente es importante destacar que no es una práctica legal el uso de arena de la playa para ello) no se sobrepasarían los valores recomendados. Además debe considerarse que la normativa es para el material terminado y la arena se utiliza en menores proporciones formando parte del material de construcción. Si se analizan los índices radiológicos, con el fin de evaluar el exceso de radiación gamma debido al uso de la misma se obtienen los valores individuales y los promedios por zona que se detallan en la Tabla 39.

Nº muestra	Ra _{eq} (Bq.kg ⁻¹)	H _{ex}	I	H _{in}
1	122.2 ± 7.1	0.330 ± 0.019	0.434 ± 0.025	0.395 ± 0.019
2	67.0 ± 2.8	0.1810 ± 0.0075	0.2432 ± 0.0098	0.2078 ± 0.0077
3	32.7 ± 1.3	0.0883 ± 0.0035	0.1264 ± 0.0049	0.1004 ± 0.0037
4	136.0 ± 5.5	0.367 ± 0.015	0.3482 ± 0.019	0.430 ± 0.015
5	66.7 ± 2.7	0.1802 ± 0.0071	0.2427 ± 0.0094	0.2123 ± 0.0073
12	36.7 ± 1.5	0.0992 ± 0.0040	0.1396 ± 0.0055	0.1130 ± 0.0042
13	47.7 ± 1.9	0.1289 ± 0.0051	0.1756 ± 0.0068	0.1526 ± 0.0054
14	106.5 ± 4.4	0.288 ± 0.012	0.380 ± 0.015	0.332 ± 0.012
15	37.4 ± 1.5	0.1009 ± 0.0041	0.1428 ± 0.0057	0.1116 ± 0.0043
Promedio Barra de Valizas	60.5 ± 1.2	0.196 ± 0.011	0.2629 ± 0.0043	0.2283 ± 0.0034
21	262 ± 15	0.708 ± 0.040	0.9118 ± 0.0052	0.893 ± 0.041
22	90.0 ± 5.3	0.243 ± 0.014	0.323 ± 0.019	0.283 ± 0.015
23	78.2 ± 3.2	0.2113 ± 0.0085	0.281 ± 0.011	0.2483 ± 0.0088
24	54.2 ± 2.2	0.1465 ± 0.0060	0.2004 ± 0.0080	0.1667 ± 0.0062
28	43.2 ± 1.7	0.1166 ± 0.0046	0.1611 ± 0.0063	0.1377 ± 0.0049
29	88.7 ± 3.7	0.240 ± 0.010	0.320 ± 0.013	0.270 ± 0.010
Promedio Laguna de Briozzo	87.0 ± 1.6	0.265 ± 0.014	0.3513 ± 0.0057	0.2958 ± 0.0045
30	595.7 ± 9.6	1.608 ± 0.026	2.077 ± 0.033	1.824 ± 0.027
31	1245 ± 48	3.36 ± 0.13	4.33 ± 0.17	3.81 ± 0.13
32	52.6 ± 2.1	0.1422 ± 0.0017	0.1960 ± 0.0077	0.1627 ± 0.0059
33	232.4 ± 9.7	0.628 ± 0.027	0.822 ± 0.034	0.696 ± 0.026
34	691 ± 27	1.867 ± 0.072	2.404 ± 0.093	2.181 ± 0.072
35	110.0 ± 4.4	0.297 ± 0.012	0.394 ± 0.015	0.349 ± 0.012
Promedio Aguas Dulces	475.9 ± 9.5	1.307 ± 0.081	1.689 ± 0.033	1.493 ± 0.026
Recomendado	< 370	< 1	< 1	< 1

Tabla 39: índices de riesgo radiológico: actividad equivalente de radio, índice de riesgo externo, índice de concentración de actividad e índice de riesgo interno para las arenas del área de estudio y su promedio por zona

Todas las muestras de arena de la playa Barra de Valizas y de arena de la Laguna de Briozzo arrojan índices menores a los recomendados como seguros para uso como materiales de construcción, mientras que la mayoría de las muestras de arena de playa de Aguas Dulces presentan valores de actividad equivalente de radio, índice de riesgo

externo e índice de concentración de actividad mayores a los recomendados. Los valores promedios para las arenas del Balneario Aguas Dulces son mayores a los recomendados para identificar materiales de construcción que pueden causar que el nivel de referencia de 1 mSv.yr^{-1} sea excedido.

Los valores obtenidos para índices de irradiación externa para las arenas del Balneario Aguas Dulces se encuentran en el mismo orden de los obtenidos para arenas empleadas en construcción en Perúbe, Sao Paulo, Brasil (Cazula et al. 2015), así como a los obtenidos para las arenas negras de la región de Chituc levee en Rumania (Margineanu et al. 2014) y menores a los reportados para la playas de arenas negras de Camburí y Paia da Areia Preta en Espiritu Santo y Itacaré en Bahía en Brasil (Aquino 2010; Veiga et al 2006). Al igual que en el caso de la costa uruguaya, en la costa del Danubio en Rumania y en la costa brasileña está prohibida la extracción de arenas para este uso, debido al impacto ambiental que generan. Los valores obtenidos son mayores que los obtenidos en Suecia, Egipto, China, Corea del Sur y Serbia por ejemplo. En la Tabla 39 se comparan los resultados obtenidos con resultados para arenas en otros lugares en Sudamérica y el mundo.

Si se analizan los índices de irradiación interna debido a la inhalación de gas ^{222}Rn y sus productos de desintegración de vida media corta emanados por el uso de la arena como material de construcción, se obtiene resultados similares a los de irradiación externa, siendo las muestras de arena de la playa Aguas Dulces las únicas con valores superiores a los valores de referencia recomendados.

Lugar	R _{eq} (Bq.kg ⁻¹)	H _{ex}	I	H _{in}	Referencia
Barra de Valizas	60.5 ± 1.2	0.196 ± 0.011	0.2629 ± 0.0043	0.2283 ± 0.0034	Este trabajo
Laguna de Briozzo	87.0 ± 1.6	0.265 ± 0.014	0.3513 ± 0.0057	0.2958 ± 0.0045	Este trabajo
Aguas Dulces	475.9 ± 9.5	1.307 ± 0.081	1.689 ± 0.033	1.493 ± 0.026	Este trabajo
Peruibé –Sao Paulo- Brasil	358.3		1.3		Cazula et al. 2015
Suecia			0.77	0.30	Döse et al. 2016
Egipto	70.86	0.23		0.21	Baz et al. 2015
Serbia	< 10 - 308	< 0.03 – 0.83			Pantelic et al. 2015
Corea del Sur		0.081-0.306			Chang et al 2008
Chituc levee, Rumania			1.5 ± 0.1		Margineanu et al. 2014
Weinan, China	119.9 ± 4.07	0.32 ± 0.11			Lu et al. 2014
Camburí – Espiritu Santo – Brasil		4.1			Veiga et al. 2006
Camburí – Espiritu Santo – Brasil	6294 ± 264	18.2 ± 1.8		20 ± 2	Aquino 2010
Itacaré – Bahía – Brasil		9.0			Veiga et al. 2006
Praia da Areia Preta –Espiritu Santo - Brasil	10300 ± 570	30 ± 11		32 ± 12	Aquino 2010

Tabla 40: Comparación de índices de riesgo radiológico del empleo de las arenas de la zona como material de construcción y su comparación con resultados mundiales

Es importante remarcar nuevamente que estos índices se calculan para la arena como tal y no como constituyente de un material de construcción; para mayor exactitud en las determinaciones es necesario aplicar un factor de partición. De todas maneras desde el punto de vista radiológico no es recomendable el uso de la arena del Balneario Aguas Dulces con tal fin, debido al exceso de radiación gamma que puede implicar, y más allá que desde el punto de vista ambiental no es recomendable ni legal el uso de arena de playa con ese propósito.

5. CONCLUSIONES

Los trabajos realizados permiten llegar a las siguientes conclusiones.

La costa del Departamento de Rocha presenta en general mayor concentración de actividad de ^{232}Th que de ^{226}Ra , identificándose dos áreas de mayor interés radiológico debido a que presentan mayor concentración de ^{232}Th que el promedio mundial: Barra de Valizas – Aguas Dulces y Santa Teresa – Punta del Diablo. En ambas zonas existen balnearios donde sus habitantes reciben una dosis equivalente efectiva anual mayor que el promedio mundial pero inferior al valor recomendado para exposición ya existente de $1\text{ mSv}\cdot\text{año}^{-1}$ indicado por ICRP. Ambas zonas y en particular el área Barra de Valizas – Aguas Dulces pertenecen al sitio RAMSAR 290, allí se profundizó el estudio de diversos compartimentos encontrándose que la concentración de actividad de ^{232}Th supera el promedio mundial en toda el área, siendo mayor en la playa Aguas Dulces, mientras que la concentración de actividad de ^{226}Ra sólo supera el promedio mundial en la misma playa.

Existe un leve desequilibrio entre el ^{226}Ra y el ^{238}U en los suelos del área, probablemente por una mayor solubilidad del ^{226}Ra frente al ^{238}U por condiciones reductoras en algún momento desde la actualidad a los 11200 años previos.

El ^{210}Pb se encuentra en exceso frente al ^{226}Ra en los suelos y sedimentos del área, debido a la deposición del ^{210}Pb proveniente del gas ^{222}Rn atmosférico.

Todos los suelos y sedimentos del área poseen concentración de actividad de ^{137}Cs detectable.

Se detecta en la vegetación analizada (carqueja) la presencia de ^{40}K , ^{210}Pb , ^{137}Cs y ^7Be , con factores de transferencia del orden de la unidad para ^{40}K y ^{137}Cs , debiéndose profundizar en el factor de transferencia del ^{210}Pb debido a que éste posee además origen atmosférico.

La concentración de actividad alfa y beta total de las aguas del área es inferior al límite recomendado por la Organización Mundial de la Salud y la norma UNIT 833 para uso como agua potable. Las concentraciones de actividad de ^{226}Ra , ^{28}Ra y ^{210}Pb en agua potable de suministro público y en la Laguna de Briozzo, están por debajo del límite de detección. Estas concentraciones de actividad alfa y beta total hacen que los habitantes reciban una dosis anual inferior a 0.1 mSv por ingesta de las mismas, lo cual no implica un riesgo para su salud.

Los resultados obtenidos indican que las concentraciones de actividad en suelos y arenas no implican un riesgo radiológico para los habitantes ni para los turistas que visitan las playas todos los años, en las condiciones actuales. Si, en el futuro, algún proceso extractivo se lleva a cabo, con gran probabilidad de concentración de minerales, se debe realizar un nuevo estudio de impacto radiológico.

Los resultados de dosis equivalentes efectivas anuales promedio obtenidos no ameritan realizar mayores recomendaciones a la población, ni a las autoridades; de todas maneras es aconsejable en el caso de los niños pequeños evitar el contacto prolongado con las zonas visiblemente negras de la arena de playa con el fin de minimizar la tasa de exposición.

Las concentraciones de actividad de los compartimentos estudiados se encuentran dentro de los límites de referencia, entonces la presencia del yacimiento de arenas negras en la región no afecta la calidad de vida de residentes ni de turistas.

No es recomendable – además de no ser legal – desde el punto de vista radiológico el empleo de la arena de la Playa de Aguas Dulces como material de construcción debido al exceso de radiación gamma externa e interna que implica.

6. TRABAJO FUTURO

El trabajo realizado, ya sea en cuanto a la creación de infraestructura, como respecto a los resultados obtenidos, permite continuar el desarrollo del tema en variados aspectos.

Serán interesantes estudios radioecológicos en el sitio RAMSAR 290, en particular en sistemas “cerrados” como la Laguna de Briozzo o con aportes de agua externos fácilmente identificables como el sistema Laguna de Castillos –Arroyo Valizas, de manera de elaborar modelos compartimentales. En estos estudios será importante poder determinar con menor límite de detección radionucleidos ya medidos como ^{238}U y ^{232}Th en los compartimentos ya estudiados y en otros como ser agua. Esto implica incluir la determinación de los mismos por espectrometría alfa. Asimismo el estudio debe implicar la cuantificación de los radionucleidos de las series de ^{238}U y ^{232}Th , y el ^{40}K , así como ^{137}Cs y ^7Be en otras especies vegetales presentes en la zona, y en moluscos y peces habitantes del área.

Desde el punto de vista de la salud humana es importante cuantificar además los radionucleidos en los mencionados moluscos y peces, en las especies vegetales de consumo y en carne y leche de los vacunos criados en los campos del sitio RAMSAR 290.

Para completar el estudio del sitio RAMSAR 290 es importante caracterizar el suelo, y los mecanismos de transferencia y especiación química de los radionucleidos entre los distintos compartimentos.

Los trabajos futuros también deberán incluir la determinación de los radionucleidos naturales en materiales de construcción utilizados en el País.

Finalmente, podrán realizarse varios trabajos en colaboración con otros grupos de investigación en temas más diversos como la geocronología y la erosión de suelos.

Los trabajos por realizar superan ampliamente lo ya realizado, pero los resultados obtenidos son prometedores no sólo en el área de geología médica y radioecología sino que posibilitan, como se indicó, variedad de investigaciones interdisciplinarias.

7. REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS

Abdel-Aal M., Abdel-Karim M., Abdel-Hay M., El-Shafey (2012) “Mineralogy and chemical distribution study of placer cassiterite and some associated new recorded minerals, east Rosetta, Egypt”, *Arab J Geosci* 5:807–816.

Agbalagba E.O., Awwiri G.O., Chad-Umoreh Y.E. (2012) “ γ -Spectroscopy measurement of natural radioactivity and assessment of radiation hazard indices in soil samples from oil fields environment of Delta State, Nigeria”, *J. Environmental Radioactivity* 109: 64-70.

Ajayi O. (2009) “Measurement of activity concentrations of ^{40}K , ^{226}Ra and ^{232}Th for assessment of radiation hazards from soils of the southwestern region of Nigeria”, *Radiat Environ Biophys* 48: 323-332.

Alazemi N., Bajoga A.D, Bradley D.A, Regan P.H, Shams H (2016) “Soil radioactivity levels, radiological maps and risk assessment for the state of Kuwait”, *Chemosphere* 154:55-62.

Al-Hamarneh I.F. y Awadallah M. I. (2009) “Soil radioactivity levels and radiation hazard assessment in the highlands of northern Jordan”, *Radiation Measurements* 44: 102-110.

Al-Hilal M. y Aissa M. (2015) “Characterizing the natural radiation levels throughout the main geological unit of Sabkhay al Jabboul area, northern Syria”, *J. Environmental Radioactivity* 140: 1-10.

Alkhomashia N., Al-Hamarneh IF., Almasoud F. (2016) “Determination of natural radioactivity in irrigation water of drilled wells in northwestern Saudi Arabia”, *Chemosphere* 144: 1928–1936.

Al-Masri M.S., Al-Akel B., Nashawani A., Amin Y., Khalifa K.H., Al-Ain F. (2008) “Transfer of ^{40}K , ^{238}U , ^{210}Pb and ^{210}Po from soil to plant in various locations in south of Syria”, *J. Environmental Radioactivity* 99: 322-331.

Al-Masri M.S., Amin Y., Ibrahim S., Nassri M. (2015) “Transfer of ^{210}Po , ^{210}Pb and ^{238}U from some medicinal plants to their essential oil”, *J. Environmental Radioactivity* 141: 51-56.

Altamirano A., (2001) Information Sheet on Ramsar Wetlands.

https://rsis.ramsar.org/RISapp/files/RISrep/UY290RISformer2001_EN.pdf?language=en

Alves de Lima Ferreira P., Portella Ribeiro A., Giseli do Nascimento M., de Castro Martins C., Michaelovitch de Mahiques M., Montone R.C., Lopes Figueira R.C. (2013) “¹³⁷Cs in marine sediments of Admiralty Bay King George Island, Antarctica”, Science of Total Environment 43: 505-510.

Alvin M. P., Cummins B., Hill R. (2016) “Discovery of the Madimba heavy mineral sand deposit, Mtwara Region, Tanzania”, Applied Earth Science (Trans. Inst. Min. Metall. B): 1-16.

ANCAP (1972) “Arenas Negras”, Rev. Despegue, Serie artículos de interés general, Div. Relaciones Industriales – Depto capacitación N°2: 1-7.

Angusamy N. y Rajamanickam G. (2006) “Depositional environment of sediments along the southern coast of Tamil Nadu, India”, Oceanologia, 48 (1): 87–102.

Ansoborlo E., Berard P., Den Auwer C., Leggett R., Menetrier F., Younes A., Montavon G., Moisy P. (2012) “Review of Chemical and Radiotoxicological Properties of Polonium for Internal Contamination Purposes”, Chem. Res. Toxicol 25: 1551-1564. dx.doi.org/10.1021/tx300072w.

APHA (1998) “Standard Methods for the examination of waters and waste water”, 20th Edition. Eds Clesceri L.S., Greeberg A.E., Eaton A.D. 7.8 – 7.19.

Aquino R.R. (2010) “Avaliação da radioatividades natural em areias das Praias da Grande Vitoria –Espiritu Santo”, Tesis de Maestría, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares IPEN-CNEN/SP, Sao Paulo:79. <http://www.teses.usp.br>.

Arnedo M.A., Rubiano J.G., Alonso H., Tejera A., González A., González J., Gil J.M., Rodríguez R., Martel P., Bolivar J.P., (2017) “Mapping natural radioactivity of soils in the eastern Canary Islands”, J. Environmental Radioactivity 166(2): 242-258.

ARNR (2014) <http://www.miem.gub.uy/web/proteccion-radiologica/marco-normativo;jsessionid=DAF8B1CA740D85F47C8A95962699958A>.

Arogunjo A.M., Hollriegl V., Giussani A., Leopold K., Gerstmann U., Veronese I., Oeh U. (2009) “Uranium and thorium in soils, mineral sands, water and food samples in a tin mining area in Nigeria with elevated activity”, J. Environmental Radioactivity 100: 232-240.

Asaduzzaman Kh., Khandaker M. U., Amin Y. M., Zainuddin Z., Farook M. S., Bradley D. A. (2015) “Measurement of radioactivity and heavy metal levels in edible

vegetables and their impact on Kuala Selangor communities of peninsular Malaysia”, Radiation Protection Dosimetry, doi:10.1093/rpd/ncv237.

Asaduzzaman Kh., Mayeen Uddin Khandaker, Amin Y.M., Bradley D.A., Mahat R.H., Nor R.M. (2014) “Soil-to-root vegetable transfer factors for ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K , and ^{88}Y in Malaysia”, J. Environmental Radioactivity 135: 120-127.

ATSDR (1999) “Toxicological profile for ionizing radiation” US Department of Health and Human Services Public Health Service: 81-179.

Aziz Saleh M., Termizi Ramli A., Alajerami Y., Sadiq Aliyu A. (2013) “Assessment of Environmental ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K concentrations in the region of elevated radiation background in Segamat District, Johor, Malaysia”, J. Environmental Radioactivity 124:130-140.

Baeza A., Corbacho J.A., Guillén J. (2016) “Accuracy associated with the activity determination by in situ gamma spectrometry of naturally occurring radionuclides in soils”, J. Environmental Radioactivity 162-263: 219 – 234.

Bangotra P., Mehra R., Kaur K., Jakhu R. (2016) “Study of natural radioactivity (^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K) in soil samples for the assessment of average effective dose and radiation hazards”, Radiation Protection Dosimetry 1-5.

Bañobre C., Díaz-Francés I., Noguera A., Bentos Pereira H., Fornaro L., Manjón G., García-Tenorio R. (2017) “ ^{210}Po determination in Sandy soils by alpha- particle spectrometry”, International Conference on Environmental Radioactivity (ENVIRA 2017), Lituania.

Barros L.F., Pecequilo B.R.S. (2014) “The influence of environmental aspects in the variation of natural radioactivity levels in selected Brazilian beach sand samples”. In: Cessa M (ed) Environmental Health Physical, Chemical and Biological Factors, Nova Science Publishers, New York, pp 73-99.

Bateman M.A. (1910) “The solution of a system of differential equations occurring in the theory of radio-active transformations”. Proceeding of the Cambridge Philosophical Society, Mathematical and Physical Sciences 15: 423-427.

Baz S.S., Al-Ghamdi A.H., Ahmed Fakeha A., Alamoudi Z.M. (2015) “Natural radioactivity measurement and evaluation of radiological hazards in some environmental materials from Aswan area, Upper Egypt”, J. of American Science 11(3): 28- 33.

Beck H.L. (1972) “The physics of environmental radiation fields” Natural radiation environment II. CONF-72085 P2, Proceedings of the Second International Symposium on the Natural Radiation Environment.

Begum N., Khuzaima N., Ching F.F., Bari Md.F., Rezan S. (2016) “Characterization of Langkawi Black Sand for the recovery of Titanium”, Engineering Materials 709: 70-73.

Beretka J., Mathew P.J. (1985) “Natural Radioactivity of Australian building materials, industrial wastes and by-products”, Health Phys 48: 87-95.

Bernstein S., Frei D., McLimans R.K., Knudsen C., Vasudev V.N. (2008) “Application of CCSEM to heavy mineral deposits: Source of high-Ti ilmenite sand deposits of South Kerala beaches, SW India”, Journal of Geochemical Exploration 96: 25–42.

Billa J., Han F., Didla S., Ankrah M., Yu H., Dimpah J., Brempong O., Adzanu S. (2015) “Evaluation of radioactivity levels in fertilizers commonly used in the Southern USA”, J Radioanal Nucl Chem DOI 10.1007/s10967-015-4071-z.

Blanco G., Abre P., Rajesh HM., Germs G.J.B. (2014) “Geochemistry and heavy minerals analyses on “black sands” of the lower Cambrian Fish River Subgroup (Nama Group, Namibia)”, South African Journal of Geology 117:129-148.

Blanco Rodríguez P., Vera Tomé F., Lozano J.C., Pérez-Fernández M.A. (2008) “Influence of soil texture on the distribution and availability of ^{238}U , ^{230}Th and ^{226}Ra in soils”, J. Environmental Radioactivity 99: 1247-1254.

Bollhöfer A., Brazier J., Humphrey C., Ryan B., Esparon A. (2011) “A Study of radium bioaccumulation in freshwater mussels, *Velesunio angasi*, in the Magela Creek catchment, Northern Territory, Australia”, J. Environmental Radioactivity 102: 964-972.

Bonotto D.M. (2004) “Doses from ^{222}Rn , ^{226}Ra , and ^{228}Ra in groundwater from Guarani aquifer, South America”, J. Environmental Radioactivity 76:319-335.

Bonotto D.M. y Bueno T.O. (2008) “The natural radioactivity in Guarani aquifer groundwater, Brazil”, Applied Radiation and Isotopes 66: 1507– 1522.

Bonotto D.M., Bueno T.O., Tessari B.W., Silva A. (2009) “The natural radioactivity in water by gross alpha and beta measurements”, Radiation Measurements 44(1): 92-101.

Bossi. J y Navarro R. (2000) Recursos Minerales del Uruguay, Editorial Rojobona N°320778: 275-278.

Bracco R., García-Rodríguez F., Inda H., del Puerto L. Castiñeira C., Panario D. (2011) “Niveles relativos del mar durante el Pleistoceno final-Holoceno en la costa del Uruguay” en “El Holoceno en la zona costera de Uruguay” CSIC, UdelaR ISBN 978-9974-0-0757-4: 65:92.

Brenner M., Peplow A.J., Schelske C.L. (1994) “Disequilibrium between ^{226}Ra and supported ^{210}Pb in a sediment core from a shallow Florida lake”, *Limnology and Oceanography* 39(5): 1222-1227.

Bryan K.R., Robinson A., Briggs R.M. (2007) “Spatial and temporal variability of titanomagnetite placer deposits on a predominantly black sand beach”, *Marine Geology* 236: 45–59.

Čadová M., Havránková R., Havránek J. Zölzer F. (2017) “Radioactivity in mushrooms from selected locations in the Bohemian Forest, Czech Republic”, *Radiat Environ Biophys* DOI 10.1007/s00411-017-0684-7.

Calin M. R., Ion A. C., Radulescu I. (2015) “Evaluation of quality parameters and of natural radionuclides concentrations in natural mineral water in Romania”, *J Radioanal Nucl Chem* 303:305–313.

CANBERRA (2014) “LB4200 System Level Test Procedure”, A-10000003439 rev J.

Caridi F., Marguccio S., Beldevere A., Belmusto G., Marciano G., Sabatino G., Mottese A. (2016) “Natural radioactivity and elemental composition of beach sands in the Calabria region, south of Italy”, *Environ. Earth Sci.* 75: 629: 1-7.

Carpenter R.H., Carpenter S.F. (1991) “Heavy mineral deposits in the upper coastal plain of North Carolina and Virginia”, *Economic Geology* 86: 1657–1671.

Castaño J., Gimenez A., Ceroni M., Furest J., Aunchayna R. (2011) “Caracterización Agroclimática del Uruguay 1980:2009” en INIA sección técnica 193: 1-40.

Cazula C.D., Campos M.P., Mazzilli B.P. (2015) “Gamma exposure due to building materials in a residential building at Peruíbe, Sao Paulo, Brazil”, *J. Radioanal Nucl Chem* 306: 637-640.

Cinelli G., Tositti L., Capaccioni B., Brattich E., Mostacci D (2014) “Soil gas radon assessment and development of a radon risk map in Bolsena, Central Italy”, *Environ Geochem Health*. DOI 10.1007/s10653-014-9649-9.

Chang B.U., Koh S.M., Kim Y.J., Seo J.S., Yoon Y.Y., Row J.W., Lee D.M. (2008) “Nationwide survey on the natural radionuclides in industrial raw minerals in South Korea”, *J. Environmental Radioactivity* 99:455-460-

Charro E., Pardo R., Peña V. (2013) “Statistical analysis of the spatial distribution of radionuclides in soils around a coal-fired power plant in Spain”, *J. Environmental Radioactivity* 124: 84-92.

Chen J., Rennie M.D., Sadi B., Zhang W., St-Amant N. (2016) “A study on the levels of radioactivity in fish samples from the experimental lakes area in Ontario, Canada”, *J. Environmental Radioactivity* 153: 222-230.

Chkir N., Guendouz A., Zouari K., Hadj Ammar F., Moulla A.S. (2009) “Uranium isotopes in groundwater from the continental intercalaire aquifer in Algerian Tunisian Sahara (Northern Africa)”, *J. Environmental Radioactivity* 100:649-656.

Cook D.J. (1969) “Heavy minerals in Alaskan beach sand deposits”, Reporte N° 20. Mineral Industry Research Laboratory University of Alaska.

Council Directive (2013) Directive 2013/59/EURATOM. <http://eur-lex.europa.eu/eli/dir/2013/59/oj>.

Cukrov N, Mlakar M., Cuculic V., Barisic D. (2009) “Origin and transport of ^{238}U and ^{226}Ra in riverine, estuarine and marine sediments of the Krka River, Croatia”, *J. Environmental Radioactivity* 100:497-504.

Cunningham K.I., LaRock E.J. (1991) “Recognition of microclimate zone through Radon mapping, Lechucguilla Cave, Carlsbad Caverns National Park, New Mexico”, *Health Physics* 61(4): 493-500.

Cutshall N.H., Larsen I.L, Olsen C.R. (1983) “Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples: self-absorption corrections”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 206: 309-312.

Currie L.A. (1968) “Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to Radiochemistry”, *Analytical Chemistry* 40:586-593.

Das B., Deb A., Chowdhury S. (2017) “Radiological impact of some common food of Southern part of West Bengal, India”, *Radiation Protection Dosimetry*, doi:10.1093/rpd/ncx246.

De Carvalho A.M., Duarte M.C.T., Ponezi A.N. (2015) “Quality assessment of sulfurous thermal waters in the city of Poços de caldas, Minas gerais, Brazil”, *Environ Monit Assess* 187:563 DOI 10.1007/s10661-015-4743-8.

Dennan A.R., Rogers S., Ali A., Sinclair J., Phillips P.S., Crockette R.G.M., Groves-Kirkby C.J.G. (2015) “Small area mapping of domestic radon, smoking prevalence and lung cancer incidence - A case study in Northamptonshire, UK”, *J. Environmental Radioactivity* 150: 159-169.

De Paiva J.D.S., Sousa E.E, De Farias E.E.G, Carmo A.M, Souza E.M, De Franca E.J (2015) “Natural radionuclides in mangrove soils from the State of Pernambuco, Brazil”. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* doi: 10.1007/s10967-015-4446-1.

Desideri D., Meli M.A., Roselli C (2010) “Natural and artificial radioactivity determination of some medicinal plants”, *J. Environmental Radioactivity* 101:751-756.

Desideri D., Roselli C., Feduzi L., Meli MA. (2007) “Radiological characterization of drinking waters in Central Italy”, *Microchemical Journal* 87: 13–19.

Díaz –Francés I., Mantero J., Díaz- Ruiz J., Manjón G. , García-Tenorio R. (2015) “ ^{210}Po in the diet at Seville (Spain) and its contribution to the dose by ingestion”, *Radiation Protection Dosimetry*: 1–6.

Díaz –Francés I., Mantero J., Manjón G. , Díaz J. García-Tenorio R. (2013) “ ^{210}Po and ^{238}U isotope concentrations in commercial bottled mineral water samples in Spain and their dose contribution”, *Radiation Protection Dosimetry* 156(3):336–342.

Dillenburg S. R., Tomazell L. J., Barboza E.G. (2004) “Barrier evolution and placer formation at Bujuru southern Brazil”, *Marine Geology* 203 (1-2): 43-56.

DINAMIGE (2017) “Visualizador geológico minero”, http://visualizadorgeominero.dinamige.gub.uy/DINAMIGE_mvc/

Djelic G., Krstic D., Stajic J.M., Milenkovic B., Topuzovic M., Nikezic D., Vucic D., Zeremski T., Stankovic M., Kostic D. (2016) “Transfer factors of natural radionuclides and ^{137}Cs from soil to plants used in traditional medicine in central Serbia”, *J. Environmental Radioactivity* 158-159: 81-88.

Dörr H. y Münnich K.O. (1989) “Downward movement of soil organic matter and its influence on trace-element transport (^{210}Pb , ^{137}Cs) in the soil”, *Radiocarbon* 31(3) 655-663.

Döse M., Silwerbrand J., Jelinek C., Trägardh J., Isaksson M. (2016) “Naturally occurring radioactivity in some Swedish concretes and their constituents –Assessment by using I-index and dose-model”, *J. Environmental Radioactivity* 155-156: 105-111.

Drndarski N., Golobocanin D., Tutunovic I. (1996) “Natural radioactivity of fresh waters in Serbia”, *J. Radioanl. Nucl. Chem Letters* 213(5): 361-368.

Duenas C., Fernández M.C., Enriquez C., Carretero J., Liger E. (1998) “Natural Radioactivity levels in Andalusien spas”, *Wat. Res* 32(8):2271-2278.

Dugan P. y Dieguez A. 1988 Ramsar Convention Monitoring Procedure: Bañados del Este, Uruguay. https://rsis.ramsar.org/RISapp/files/RAM/RAM_005_UY_en.pdf.

EPA (2017) <https://www.epa.gov/radon>.

Ferrando L., Bossi J., Maldonado S., Schipilov A., Campal N. (2003) “Evaluación de Reservas de Arenas Negras en Aguas Dulces, Departamento de Rocha, Uruguay”, *Rev. de la Sociedad Uruguaya de Geología*, III Época 10: 15-28.

Fonollosa A., Peñalver A., Borrull F., Aguilar C. (2016) “Radon in spring waters in the south of Catalonia”, *J. Environmental Radioactivity* 151:275-281.

Forkapic S., Vasin J., Bikit I., Mrdja D., Bikit K., Milic S. (2017) “Correlations between soil characteristics and radioactivity content of Vojvodina soil”, *J. Environmental Radioactivity* 166:104-111.

Fornaro L. (2008), Tesis de doctorado en Química “Detectores de radiación de aplicación en conteo, espectrometría e imagenología de Radiación X y γ a temperatura ambiente”, Facultad de Química, Universidad de la República, Uruguay.

Freitas A.C., Alencar A.S. (2004) “Gamma dose rates and distribution of natural radionuclides in sand beaches – Ilha Grande, Southeastern Brazil”, *J. Environmental Radioactivity* 75: 211-213.

Galhardi J.A., García-Tenorio R., Bonotto D.M., Díaz-Francés I., Motta J.G. (2017) “Natural radionuclides in plants, soils and sediments affected by U-rich coal mining activities in Brazil”, *J. Environmental Radioactivity* 177:37-47.

Gilmore G.R. (2008) “Practical Gamma-ray spectrometry”, John Wiley & Sons. 2nd Edition.

Godoy J.M., Godoy M.L. (2006) “Natural radioactivity in Brazilian groundwater”, J. Environmental Radioactivity 85: 71-83.

Gómez Escobar V., Vera Tomé F., Martín Sánchez A. (1996) “Gross Alpha – and Beta – Activities in Rainwater and Airborne Particulate Samples. Influence of Rainfall and Radon”, J. Environmental Radioactivity 31: 273-285.

Grande S. y Risica S. (2015) “Radionuclides in drinking water: the recent legislative requirements of the European Union”, J. Radiol. Prot. 35- 1.

Grosch D.S., Hopwood L.E., (1979) “Biological effects of radiations” Academic Press, New York, USA.

Gruber, V., Ringer, W., & Friedmann, H. Timal, Guenter (Ed.). (2015). “Radon mapping in Austria New strategies and first results”. Germany: TUEV Media GmbH.

Guembou Shouop C.J., Ndontchueng Moyo M., Chene G., Nguelem Mekontso E.J., Motapon O., Kayo. S.A., Strivay D. (2017) “Assessment of natural radioactivity and associated radiation hazards in sand building material used in Douala Littoral Region of Cameroun, using gamma spectrometry”, Environ. Earth Sci 76:164-175.

Guidotti L., Carini F., Rossi R., Gatti M., Cenci R., Beone G. (2015) “Gamma-spectrometric measurement of radioactivity in agricultural soils of the Lombardia region, northern Italy”, J. Environmental Radioactivity 142: 36-44.

Hannan M., Wahid K., Nguyen N. (2015) “Assessment of natural and artificial radionuclides in Mission (Texas) surface soils”, J. Radioanal. Nucl. Chem. doi: 10.1007/s10967-015-4018-4.

Heidi O., Lotter A.F., Lemcke G. (2001) “Loss on ignition as a method for estimating organic and carbonate content in sediments: reproducibility and comparability of results”, J. of Paleolimnology 25: 101-110.

Hu Y., Yan S., Xia C., Dona Z., Liu G. (2017) “Distribution characteristics and radiotoxicity risks of radium-226 (^{226}Ra) in groundwater from Wanbei Plain, China”, J Radioanal Nucl Chem DOI 10.1007/s10967-017-5186-1.

IAEA (1997) “Low doses of ionizing radiation: biological effects and regulatory control. Contrinuted papers”, Technical Reports Series 976, Viena.

IAEA (2009) “Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments”, Technical Reports Series 1616, Viena.

IAEA (2010) “Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments”, Technical Reports Series N°472, Vienna

IAEA (2011) “Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards”, Tech General Safety Requirements Part 3. Vienna.

IAEA (2013) “Natural and artificial radionuclides in sediment from the Irish Sea”, Reference Sheet for IAEA-385, Vienna: 1-5.

IAEA (2017) Live Chart of Nuclides, Nuclear Data Section, Vienna, Austria <https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>.

Ibikunle S. B., Ajayi O. S., Arogunjo A. M., Omoboyeje O. V. (2016) “Measurement of natural radioactivity in rainwater samples collected from different rooftops and sources in Akure, Nigeria”, *Environmental Forensics*, 17(2): 136-143. DOI: 10.1080/15275922.2016.1163622.

ICRP (2007) “ICRP Publication 103”, “The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection”.

ICRP (2012) “ICRP publication 119: Compendium of Dose Coefficients based on ICRP 60” 71-86.

INE (2017) Instituto Nacional de Estadística <http://www.ine.gub.uy/rocha>.

Jayanthi D.D., Maniyan C.G., Perumal S. (2014) “Measurement of activity concentration of radionuclides and the committed annual effective dose due to the consumption of typical South Indian meal”, *Int. J. Low Radiation*, 9(3): 181-188.

Jia G., Torri G., Magro L. (2009) “Concentration of ^{238}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{224}Ra , ^{210}Po , ^{210}Pb and ^{212}Pb in drinking water in Italy: reconciling safety standards based on measurements of gross α and β ”, *J. Environmental Radioactivity* 100: 941-949.

Jobbágy V., Kávási N., Somlai J., Dombovári p., Gyöngyösi C., Kovács T. (2011) “Gross alpha and beta activity concentrations in spring waters in Balaton Upland, Hungary”, *Radiation Measurements* 46:159-163.

Jobbágy V., Wätjen U., Meresova J. (2010) “Current status of alpha/beta activity analysis in water samples: a short overview of methods”, J. Radioanal. Nucl. Chem. DOI 10.1007/s10967-010-0709-z.

Kardan M.R.R., Fathbdi N., Attarilar A., Esmaeili-Gheshlaghi M.T., Karimi M., Najafi A., Hosseini S.S. (2017) “A national survey of natural radionuclides in soils and terrestrial radiation exposure in Iran”, J. Environ. Radioact. 178-179: 168-175.

Knoll G.F. (2000) “Radiation Detection and Measurements” 3^o Edition. Ed. John Wiley & Sons. Inc. USA.

Koch-Steindl H., Prohl G. (2001) “Considerations on the behavior of long-lived radionuclides in soil”, Rad. Environ. Biophys 40:93-104.

Kovacs T., Szeiler G., Fabián F., Kardos R., Gregoric A. (2013) “Systematic Survey of natural radioactivity of soil in Slovenia”, J. Environmental Radioactivity, 122: 70-78.

Landa E.R. (2007) “Naturally occurring radionuclides from industrial sources: characteristics and fate in the environment” en “Radioactivity in the Terrestrial Environmet” editado por G. Shaw, Elsevier 10:211-238.

Landsberger S.G., George G. (2013) “An evaluation of ²²⁶Ra and ²²⁸Ra in drinking water in several counties in Texas, USA”, J. Environmental Radioactivity 125:2-5.

Lazarus, J. H. (1986) “Endocrine and Metabolic Effects of Lithium”, ISBN 978-1-4899-2016-4.

Lelsch G., Cushing M.E., Combes Ph., Cuney M. (2010) “Mapping of the geogenic radon potential in France to improve radon risk management: methodology and first application to region Bourgogne”, J. Environmental Radioactivity 101: 813-820.

Lenka P., Jha SK., Gothankar S., Tripathi R.M., Puranik V.D. (2009) “Suitable gamma energy for gamma-spectrometric determination of ²³⁸U in surface soil samples of a high rainfall area in India”, J. Environmental Radioactivity 100: 509-514.

Lovesand W., Morrissey D.J., Seabog G.T. (2006) “Radioactive decay kinetics” en “Modern Nuclear Chemistry” 67-75.

Lu X., Chao S., Yang F. (2014) “Determination of natural radioactivity and associated radiation hazard in building materials used in Weinan, China”, Radiat Phys Chem 99:62-67.

Malanca A., Gaidolfi L., Pessina V., Dallara G. (1996) “Distribution of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in soils of Rio Grande do Norte (Brazil)”, *J. Environmental Radioactivity* 30 (1): 55-67.

Malanca A., Repetti M., Revoredo de Macedo H. (1998) “Gross alpha – and- beta activities in surface and ground water of Rio Grande do Norte, Brazil,. *Appl. Radiat. Isot* 49(7): 893-898.

Mandujano C.D., Sosa M., Mantero J., Costilla R., Manjón G., García-Tenorio R. (2016). “Radiological impact due to natural radionuclides in soils from Salamanca, México”, *Applied Radiation and Isotopes* 117:91-95.

Margineanu R.M., Blebea – Apostu A.M., Celarel A., Gomoiu C.M., Costea C., Dumitras D., Ion A., Dului O.G. (2014) “Radiometric, SEM and XRD investigation of the Chituc black sands, southern Danube Delta, Romania”, *J. Environmental Radioactivity* 138: 72-79.

Mashiatullah A., Maryam B., Asma M.,Yaqoob N., Robab U., Ghaffar A. (2016) “Activity concentration and dose estimation of ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K and ^{137}Cs in drinking water of selected areas of Punjab, Pakistan”, *Water Science & Technology: Water Supply* 16.1.

McLemore V. T., Asafo-Akowuah J., Robison A. (2016) “Mineral resource assessment of heavy mineral, beach-placer sandstone deposits at Apache Mesa, Jicarilla Apache reservation, Río Arriba Country, New Mexico” Reporte 587. New Mexico Bureau of Geology and Mineral Resources A division of New Mexico Institute of Mining and Technology.

Meli M.A., Desideri D., Roselli C., Feduzi L., Benedetti C. (2016) “Radioactivity in honey of the central Italy”, *Food Chemistry* 202 : 349–355.

Michel J. (1990) “Relationship of radium isotopes with geological formations”. In: Chotern, C.R. Rebers P.A. (Eds.), *Radon, Radium, and Uranium in Drinking Water*. Lewis publishers, Chelsea 83-95.

Mohapatra S., Sahoo S. K., Dubey J. S., Patra A. C., Thakur V. K., Tripathy S. K., Sagar D. V., Godbole S. V., Ravi P. M., Tripathi R. M. (2014) “Characterization of uranium and its progenies in drinking water and assessment of dose to public around a NHBRA, Odisha, India”, *J Radioanal Nucl Chem* DOI 10.1007/s10967-014-3353-1.

Montes M., Desimoni J (2011) “Radiological Survey in Soil of South America”, *Radioisotopes –Applications in Physical Sciences*. Prof Nirmal Singh (Ed) ISBN 978-953-307-510-5.

Montes M., Mercader R., Taylor M. (2016) “Activities of ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{40}K and ^{137}Cs in surface soil and external dose assessment at two zones of Buenos Aires Province, Argentina”, *Environ Earth Sci* 75: 320-330.

Montes M., Mercader R., Taylor M., Runco J., Desimoni J. (2012) “Assessment of natural radioactivity levels and their relationship with soils characteristics in undisturbed soils of the northeast of Buenos Aires Province, Argentina”, *J. Environmental Radioactivity* 105: 30-39.

Moreira S.R.D. (1993) Tesis de Maestría “Determinacao de ^{210}Pb em aguas minerais da cidade de Aguas da Prata” Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) BR9533240, INIS-BR-3519.

Mujica, Marotta (1968) “Arenas Negras del Uruguay. Estudio de un esquema de separación y concentración de los minerales pesados de las arenas negras de la playa de Aguas Dulces” ANCAP.

MVOTMA (2017) <http://www.mvotma.gub.uy/snap>

Nisti M.B., Saueia C.R., Malheiro L.H., Groppo G.H., Mazzilli B.P. (2015) “Lixiviation of natural radionuclides and heavy metals in tropical soils amended with phosphogypsum”, *J. Environmental Radioactivity* 144: 120-126.

Noguera A., Bentos Pereira H., Fornaro L. (2013) “Radiactividad natural en la zona costera del departamento de Rocha, Uruguay”, *AUGMDOMUS* 5:212-218.

Nuccetelli C., Pontikes Y., Leonardi F., Trevisi R. (2015) “New perspectives and issues arising from the introduction of (NORM) residues in building materials: A critical assessment on the radiological behaviour”, *Construction and Building Materials* 82: 523-531.

Odino R. (2010) Environmental Radioactivity Monitoring Plan in Uruguay. Technical Meeting on in situ methods for characterization of contaminated sites. Vienna, Austria. <http://www-pub.iaea.org/mtcd/meetings/Announcements.asp?ConfID=38924>.

Odino R., Reina E., Piuma L., Gabrielli A. (2017) “Environmental Radioactivity Monitoring Plan in Uruguay” IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series No. 49, “In Situ Analytical Characterization of Contaminated Sites Using Nuclear Spectrometry Techniques Review of Methodologies and Measurements”: 173-181.

Oliveira J. (1993) Tesis de Maestría “Determinacao de ^{226}Ra e ^{228}Ra em aguas minerais da regio de Aguas da Prata” Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) BR9432232, INIS-BR-3394.

Olivera J., Paci Mazzilli B., de Costa P., Akiko Tanaggua P. (2001) “Natural Radioactivity in Brazilian bottled mineral waters and consequent doses”, J. Radioanal. Nucl. Chem 249: 173-176.

ORTEC AMETEK (2014) Quality Assurance Data Sheet GMX Series HPGe Coaxial Detector System.

ORTEC AMETEK (2018) <http://www.ortec-online.com>.

Ozden B., Uğur A., Esetlili T., Çolak Esetlili E., Kurucu, Y. (2013). “Assessment of the effects of physical–chemical parameters on ^{210}Po and ^{210}Pb concentrations in cultivated and uncultivated soil from different areas”, Geoderma. 192. 7–11.

Pantelic G.K., Todorovic D.J., Nikolic J.D., Rajacic M.M., Jankovic M.M., Sarap N.B. (2015) “Measurement of Radioactivity in building materials in Serbia” J. Radioanal. Nucl. Chem 303: 2517-2522

Papadopoulos A., Christofides G., Pe-Piper G., Koroneos A., Papadopoulou L. (2016) “Geochemistry of beach sands from Sithonia Peninsula (Chalkidiki, Northern Greece)” Miner Petrol 109:53–66.

Papadopoulos A., Koroneos A., Christofides G., Stoulos S. (2016) “Comparison of $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ and $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ disequilibrium with weathering indices in beach sands sediments from Greece”, J. of Sedimentary Research 86: 668-682.

Pardee J.T. (1934) “Beach placers of the Oregon Coast”, United States Department Of The Interior. Harold L. Ickes, Secretary GEOLOGICAL SURVEY W. C. MENDENHALL, Circular 8, Washington.

Parlamento del Uruguay (2017) www.parlamento.guy.uy.

Patra A. C., Mohapatra S., Sahoo S. K., Lenka P., Dubey J. S., Thakur V. K., Kumar A. V., Ravi P. M., Tripathi R. M. (2014) “Assessment of ingestion dose due to radioactivity in selected food matrices and water near Vizag, India”, J. Radioanal. Nucl. Chem 300:903–910 DOI 10.1007/s10967-014-3097-y.

Pearson A.J., Gaw S., Hermanspahn N., Glover C.N. (2016) “Activity concentration of $^{137}\text{Caesium}$ and $^{210}\text{Polonium}$ in seafood from fishing regions of New Zealand and the dose assessment for seafood consumers”, J. Environmental Radioactivity 151(3): 542-550.

Peterson C.D., Komar P.D, Scheidegger K.F. (1986) “Distribution, geometry, and origin of heavy mineral placer deposits on Oregon beaches”, *Journal of Sedimentary Petrology* 56: 67–77.

Philander C., Rozendall A. (2015) “Geology of the Cenozoic Namakwa Sands heavy mineral deposit, west coast of South Africa: world-class resource of titanium and zircon”, *Economic Geology* 110: 1577–1623.

Píriz Mc-Coll (1953)a “Contenido en minerales pesados de las arenas de las costas uruguayas desde Montevideo al Chuy”, C.R. Píriz Mac-Coll, *Química Industrial*, Vol II, N° 4, 302, Montevideo.

Píriz Mc. Coll (1953)b “Las arenas negras radioactivas del Uruguay”, C.R. Píriz Mac-Coll, *Química Industrial*, Vol II, N° 4, 288, Montevideo.

Pirkle F.L., Pirkle W.A., Pirkle E.C. (2009) “Heavy mineral sands of the Atlantic and Gulf coastal plains, USA”, *Developments in Sedimentology* 58: 1145–1232.

Prater L.S. (1957) “Black Sands”, Information Circular No 1 Idaho Bureau of Mines and Geology, Moscow.

PROBIDES (2017) www.probides.org.uy.

Psichoudaki M. y Papaefhymiou H. (2008) “Natural radioactivity measurements in the city of Ptolemais (Northern Greece)”, *J. Environmental Radioactivity* 99: 1011-1017.

Quindós Poncela L.S., Fernández P.L., Gómez Arozamena J., Sainz C., Fernández J.A., Suárez Mahou E., Martín Matarranz J.L., Cascón M.C. (2004). “Natural gamma radiation map (MARNA) and indoor radon levels in Spain”, *Environmental International* 29: 1091-1096.

Ramachadan T.V., Sathish L.A. (2011) “Nationwide indoor ^{222}Rn and ^{220}Rn map for India: a review”, *J. Environmental Radioactivity* 102:975-986.

RAMSAR (2017) <http://www.ramsar.org/es/humedal/uruguay>.

Reid A., Keeling J., Boyd D., Belousova E., Hou B. (2013) “Source of zircon in world-class heavy mineral placer deposits of the Cenozoic Basin, southern Australia from LA-ICPMS U-Pb geochronology”, *Sedimentary Geology* 286–287:1–19.

Ribeiro F.C.A., Lauria D., do Rio M.A.P., da Cunha F.G., Oliveira Sousa W., Medieros E, Franzen M. (2016) “Mapping soil radioactivity in the Fernando de Noronha archipelago, Brazil”, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* doi: 10.1007/s10967-016-5059-z

Rocca P. y Aldabe J. (2012). “Chorlos y playeros migratorios de la Laguna de Rocha. Manual para su indentificación y conservación”, Aves Uruguay, Montevideo, Uruguay.

Rocha N. 2013 “De Agua(s) Dulce(s) al Cabo Polonio una expedición en la Historia” Ediciones Tradinco, Uruguay.

Rosa M.M.L., Taddei M.H.T., Cheberle L.T.V., Ferreira M.T., Santos S.M.C., Avegliano R.P., Bergamini G., Maihara V.A. (2015) “Determination of ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{228}Th , ^{230}Th , ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{228}Ra , and ^{210}Pb in foods from Brazilian Total Diet”, *J Radioanal Nucl Chem* 306:695–700.

Roselli C., Desideri D., Cantaluppi C., Ceccotto F., Feduzi L., Meli M.A. (2017) “Radioactivity measurements and dosimetric evaluation in meat of wild birds”, *Journal of Toxicology and Environmental Health, Part A.* doi: 10.1080/15287394.2017.1329103.

Roy P.S. (1999) “Heavy mineral beach placers in southeastern Australia: Their nature and genesis”, *Economic Geology* 94: 567–588.

Sajo-Bohus L., Gómez J., Capote T., Greaves E.D., Herrera O. Salazard V., Smith A. (1997) “Gross Alpha Radioactivity of Drinking Water in Venezuela”, *J. Environmental Radioactivity* 35(3): 305-312.

Sainz-Fernández C., Fernández-Villar A., Fuentes-Merino I., Gutierrez-Villanueva J.L., Martín-Matarranz J.L., García-Talavera M., Casal-Ordas S., Quidos-Poncela L.S. (2014) “The Spanish indoor radon mapping strategy”, *Radiation Protection Dosimetry* 1:5. doi:10.1093/rpd/ncu218.

Santawamaitre T., Malain D., Al-Sulaiti H.A., Bradley D.A., Matthews M.C., Regan P.H. (2014) “Determination of ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K activity concentrations in riverbank soil along the Chao Phraya river basin in Thailand”, *J. Environmental Radioactivity* 138: 80-86.

Sanusi M.S.M., Ramli A.T., Basri N.A., Heryanshah A., Said M.N., Lee M.H., Wagira H., Saleh M.A. (2017) “Thorium distribution in the soils of Peninsular Malaysia and its implications for Th resource estimation”, *Ore Geology Reviews* 80: 522–535.

Sas Z., Somlai J., Szeiler G. (2015) “Usability of clay mixed red mud in Hungarian building material production industry”, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* DOI 10.007/s10967-015-3966Z.

Sathyapriya R. S., Prabhath R. K., Acharya R., Rao D. D. (2017) “Assessment of annual intake of thorium from animal origin food consumed by population residing in monazite rich area of southern India”, *J. Radioanal Nucl Chem* 312:405–412. DOI 10.1007/s10967-017-5231-0.

Shabana E.I., Kinsara A.A. (2014) “Radioactivity in the groundwater of a high background radiation area”, *J. Environmental Radioactivity* 137:181-189.

Shams H.M., Bradley D.A., Alshammari H., Regan P.H. (2017) “A review of the evaluation of TENORM levels at the produced water lagoon of the Minagish oil field using high-resolution gamma-ray spectrometry”, *Radiation Physics and Chemistry* 140: 122-126.

Shuktomova I.I., Rachkova N.G. (2011) “Determination of ^{226}Ra and ^{228}Ra in slightly mineralized natural waters”, *J. Environmental Radioactivity* 102: 84-87.

Silva PSC., Mazzilli BP., Favaro DIT. (2006) “Distribution of radionuclides and elements in Cubatao River sediments”, *J. Radioanal. Nucl. Chem* 269:767-771.

Silva L.S. y Pecequilo B.R.S. (2011) “Gross alpha and beta activities in surface, underground and drinking waters of a high natural radioactivity region of central south Bahia state, Brazil”, *Radioprotection* 46, (6): S63–S67.

Sirelkhatim D.A., Sam A.K., Hassona R.K. (2008) “Distribution of ^{226}Ra - ^{210}Pb - ^{210}Po in marine biota and surface sediments of the Red Sea, Sudan”, *J. Environmental Radioactivity* 99:1825-1828.

Skwarzec B., Kabat K., Astel A. (2009) “Seasonal and spatial variability of ^{210}Po , ^{238}U and $^{239+240}\text{Pu}$ levels in the river catchment area assessed by application of neural-network based classification”, *J. Environmental Radioactivity* 100: 167-175.

Soares de Lima C., et al. (2002) “Estudio geológico minero del depósito de Arenas Negras de Aguas Dulces, Departamento de Rocha” División Geología, Ministerio de Industria, Energía y Minería, Dirección Nacional de Minería y Geología (DINAMIGE).

Soliman M.S.A., Hegazy A.K., Goda S.K., Emam M.H., Al-Atar A.A. (2011) “Cytotoxicity and mutagenic effects of soil radionuclides on some black sand plant species”, *Journal of Mediterranean Ecology*, 11: 5-20.

Spencer Cronan D. (1999) “Handbook of Marine Mineral Deposits”, CRC London.

Sussa F.V., Damatto S.R., Alencar M.N., Mazilli B.P., Silva P.S.C. (2013) “Natural radioactivity determination in samples of *Peperomia pellucida* commonly used as a medicinal herb”, *J. Environmental Radioactivity* 116:148-151.

Suursoo S., Hill L., Raidla V, Kiiska M., Jantsikene A., Nilb N., Czuppon G., Putk K., Munter R., Koch R., Isakar R. (2017) “Temporal changes in radiological and chemical composition of Cambrian-Vendian groundwater in conditions of intensive water consumption”, *Science of the Total Environment* 601–602: 679–690.

Teramage M.T., Onda Y., Wakiyama Y., Kato H., Kandad T. Tamurad K. (2015) “Atmospheric ^{210}Pb as a tracer for soil organic carbon transport in a coniferous forest”, *Environ. Sci.: Processes Impacts* 17: 110-119.

Tollefsen T., Cinelli G., Bossew P., Gruber V., DeCort M. (2014) “From the European indoor Radon map towards an Atlas of Natural Radiation”, *Radiation Protection Dosimetry* 162(1–2):129–134.

Trabidou G., Florou H., Kritidis P., Chaloulou Ch., Lykomitrou Ch. (2005) “Distribution coefficients and concentration factors of ^{226}Ra and ^{228}Th in the Greek marine environment” en “Radioactivity in the Environment” volume 7 Elsevier Ltd: 1167-1176.

Tsoufanidis N. (1983), “Measurement and Detection of Radiation”, Mc-Graw Hill, USA.

Turhan S., Ozçitak E., Taskın H., Varinlioglu A. (2013) “Determination of natural radioactivity by gross alpha and beta measurements in ground water samples”, *Wat Res* 47: 3103 -3108.

Turner J.E., Downing D.J., Bogard J.S. (2012) “Statistical methods in Radiation Physics”, Wley-VCH-Verlag GmbH&Co.

UNIT (2008) “Norma UNIT 833: 2008 Agua potable – requisitos”: 11, Uruguay.

UNSCEAR (2000) “Sources and effects of ionizing radiation”. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations. New York.

UNSCEAR (2008) “Sources and effects of ionizing radiation”. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations. New York.

UNSCEAR (2016) “Biological Effects of Selected Internal Emitters – Uranium” United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations. New York.

Vaaramaa K., Aro L., Solatie D., Lehto J. (2010) “Distribution of ^{210}Pb and ^{210}Po in boreal forest soil”, *Science of the Total Environment* 408: 6165–6171.

Valkovic V. (2000) “Radioactive Nuclides in Nature” en “Radioactivity in the Environment”, Elsevier Science: 5-31

Van Beek P., Souhaut M., Reyss J.L. (2010). “Measuring the radium quartet (^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{224}Ra , ^{223}Ra) in seawater samples using gamma spectrometry”, *J. Environmental Radioactivity* 101: 521-529.

Veiga R., Sanches N., Anjos R.M., Marcario K., Bastos J., Iguatemy M., Aguiar J.G., Santos A.M.A., Mosquera B., Carvalho C., Baptista Filho M., Umisedo N.K. (2006) “Measurement of natural radioactivity in Brazilian beach sands”, *Radiation Measurements* 41: 189-196.

Wallova G., Kulichova Z., Rajczkova E., Makovinska J. (2016) “Survey of radioactivity along the Bosna River”, *J. Radioanal Nucl Chem* 307: 247-252.

Walsh M., Wallner G., Jennings P. (2014) “Radioactivity in drinking water supplies in Western Australia”, *J. Environmental Radioactivity* 130: 56-62.

WHO (2011) “Guidelines for Drinking-water Quality” 4ed. ISBN 978 92 4 154815 1: 204-217.

Xhixha G., Baldoncini M., Callegari I., Colonna T., Hasani F., Mantovani F., Shala F., Strati V., Xhixha Kaçeli M. (2015) “A century of oil and gas exploration in Albania: Assessment of Naturally Occurring Radioactive Materials (NORMs)”, *Chemphere* 139: 30-39.

Yadav D.N., Sarin M.M. (2009) “Ra-Po-Pb isotope systematic in waters of Sambhar Salt Lake, Rajasthan (India): geochemical characterization and particulate reactivity”, *J. Environmental Radioactivity* 100: 17-22.

AGRADECIMIENTOS

A Laura, por el tiempo y empeño puesto en largas discusiones prácticas y teóricas.

A todos los compañeros del Grupo de Desarrollo de Materiales y Estudios Ambientales (Ivana, Toty, Maia, Isabel, Mauricio, Andrés, Álvaro, Heinkel, Daiana, Loe, Romina, Daniela, Germán y Cris), por el apoyo y por las horas increíbles compartidas juntos. Muy especialmente a Cris por las innumerables horas de muestreo y laboratorio compartidas, a Germán por las horas de muestreo y por el apoyo en el procesamiento de mapas de distribución de radionucleidos y a Heinkel por el apoyo en los pequeños y grandes imprevistos cotidianos.

A los funcionarios de la Guardia Republicana por permitirnos el acceso a la Laguna de Briozzo, a los funcionarios de OSE, por brindarnos las muestras de agua de suministro público y a los vecinos de Barra de Valizas y Aguas Dulces por permitirnos el acceso a sus pozos y terrenos.

A la Facultad de Química, al Centro Universitario Regional del Este, y al PEDECIBA por la oportunidad brindada.

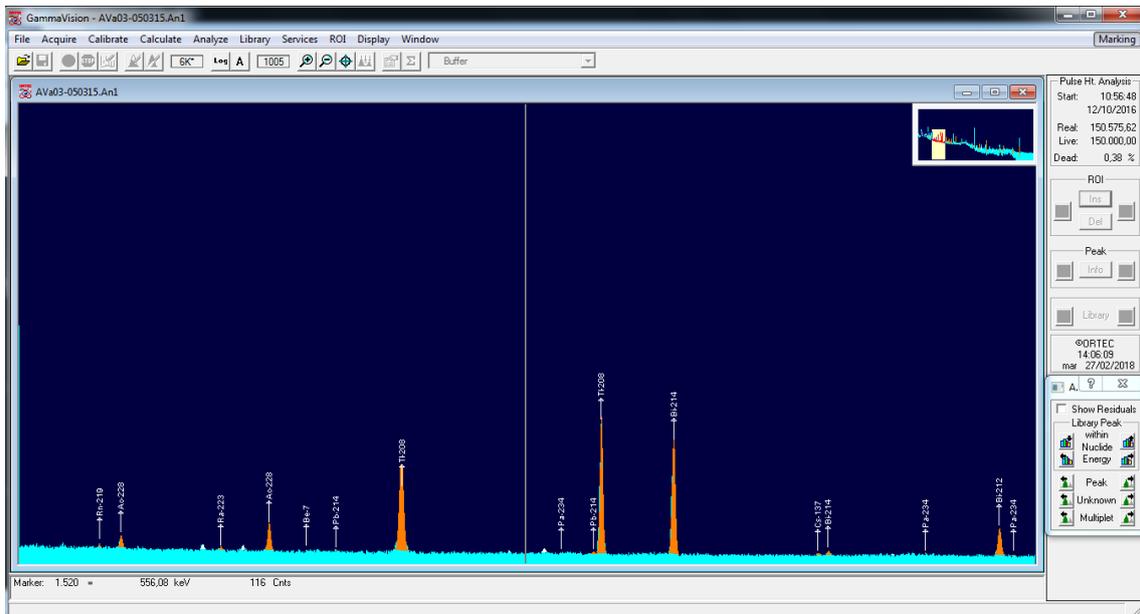
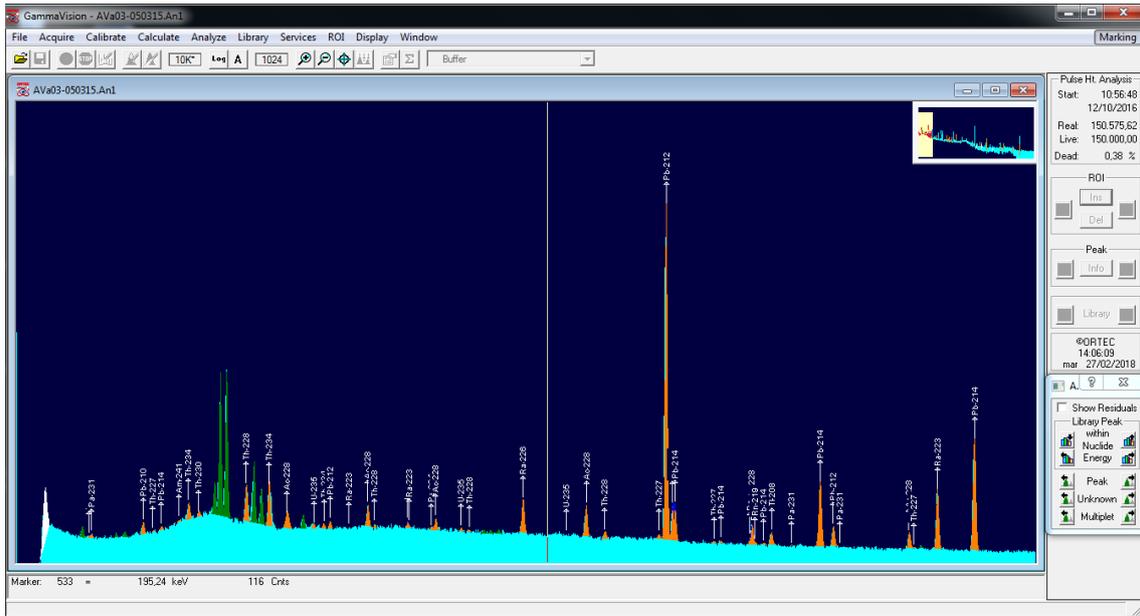
A mi familia, a los que están y a los que ya no, pero de alguna manera me acompañaron siempre. Especialmente a Heinkel por acompañarme en este largo camino.

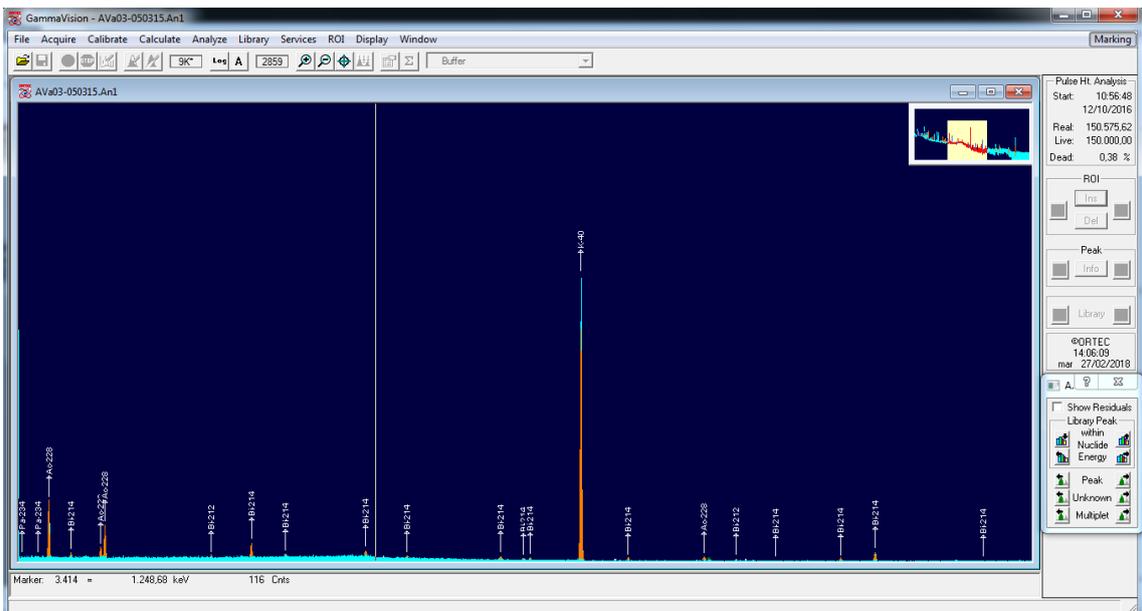
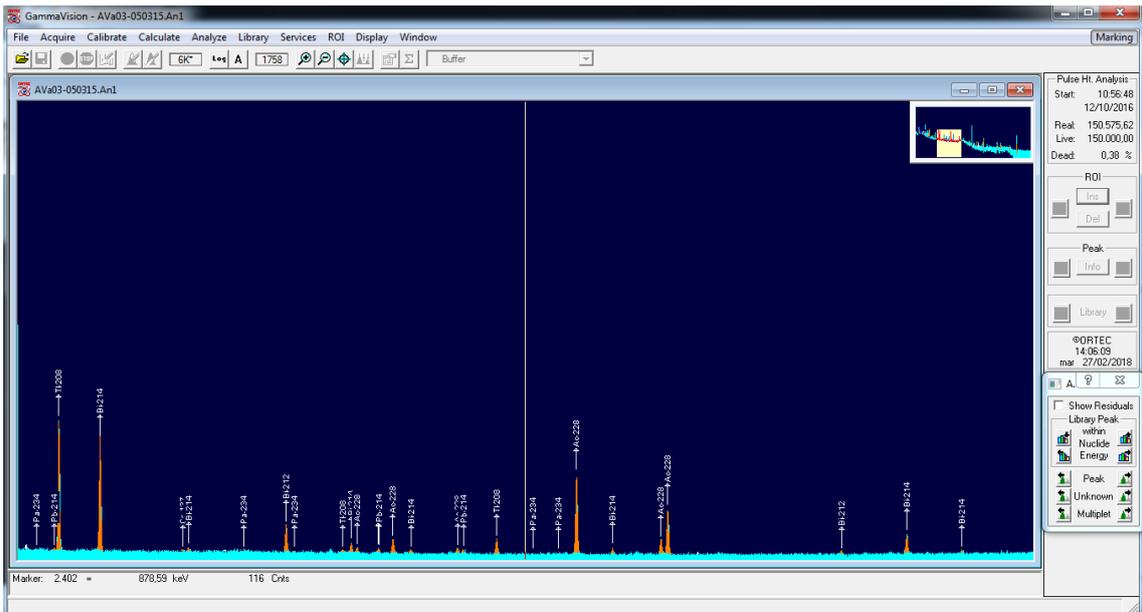
Y finalmente a todos los que de una manera o de otra han hecho posible este trabajo.

A todos, muchas gracias.

ANEXO 1

Anexo Figura 29: Espectro gamma típico de una arena del Departamento de Rocha – Barra de Valizas, por rango de energía. En el mismo se aprecian los fotopicos de los radionucleidos naturales





Anexo Figura 33: Espectro gamma de muestra de suelo del área Barra de Valizas – Aguas Dulces, por rango de energía. En el mismo se aprecian los fotopicos de los radionucleidos naturales y del ^{137}Cs

