RADIOPROTECCION

REVISTA DE LA SOCIEDAD ESPAÑOLA DE PROTECCION RADIOLOGICA

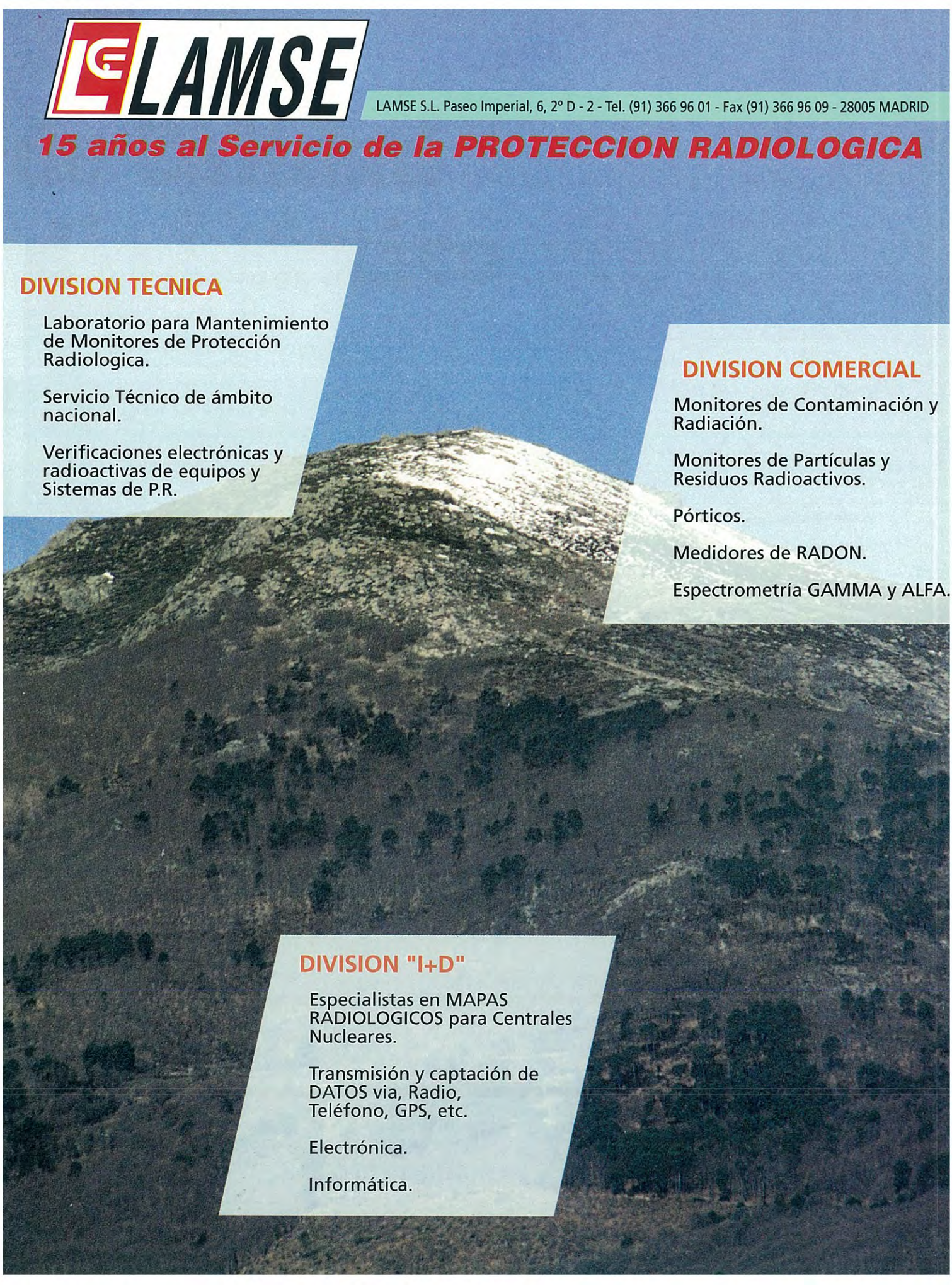
- ✔ *Estudios de* ***BIOCINÉTICA PULMONAR*** *de* ***PLUTONIO*** *y* ***AMERICIO***
- ✔ ***DOSIS*** *impartida al paciente en* ***MEDICINA NUCLEAR DIAGNÓSTICA***
- ✔ *Control de* ***EFLUENTES*** *en las* ***CENTRALES NUCLEARES*** *españolas*
- ✔ *Consecuencias* ***ECONÓMICAS*** *de los* ***ACCIDENTES NUCLEARES***
- ✔ *Aspectos* ***ÉTICOS*** *de la* ***GESTIÓN*** *de los* ***RIESGOS RADIOLÓGICOS***

Nº 11 • Vol. IV • 1996

LAMSE

LAMSE S.L. Paseo Imperial, 6, 2º D - 2 - Tel. (91) 366 96 01 - Fax (91) 366 96 09 - 28005 MADRID

15 años al Servicio de la PROTECCION RADIOLOGICA



DIVISION TECNICA

Laboratorio para Mantenimiento de Monitores de Protección Radiologica.

Servicio Técnico de ámbito nacional.

Verificaciones electrónicas y radioactivas de equipos y Sistemas de P.R.

DIVISION COMERCIAL

Monitores de Contaminación y Radiación.

Monitores de Partículas y Residuos Radioactivos.

Pórticos.

Medidores de RADON.

Espectrometría GAMMA y ALFA.

DIVISION "I+D"

Especialistas en MAPAS RADIOLOGICOS para Centrales Nucleares.

Transmisión y captación de DATOS via, Radio, Teléfono, GPS, etc.

Electrónica.

Informática.

RADIOPROTECCION

REVISTA DE LA SOCIEDAD ESPAÑOLA DE PROTECCION RADIOLOGICA
Nº11 Vol. IV • 1996

Director: Emilio Iranzo

Comité de Redacción
Coordinadora: María Teresa Macías

David Cancio, Teresa Ortiz y Margarita Sierra

Comité Científico
Coordinador: Antonio Delgado

Josep Baró, Pedro Carboneras, José Mª García Quirós, Eugenio Gil, Fernando González, José Gutiérrez, Miguel Herrador, Jerónimo Iñiguez, Ildefonso Irún, Mª Cruz Lizuain, Antonio R. López, Gloria Martí, Luis M. Martín Curto, Armando Merino, Cristina Núñez, Pilar Olivares, Mª Cruz Paredes, Vicente Pastor, Turiano Picazo, Santiago Quindos, José Carlos Saez, Antonio Salvador, Mª Luisa Sánchez-Mayoral, Angeles Sánchez, Carlos Sancho, Matilde Santos, Luis M. Tobajas, Manuel Tormo y Eliseo Vañó.

Edita SOCIEDAD ESPAÑOLA DE PROTECCION RADIOLOGICA (S.E.P.R.)
C/ Apolonio Morales, 27.
28036 Madrid

Junta Directiva de la S.E.P.R.
Presidente: Leopoldo Arranz
Vicepresidente: Eduardo Sollet
Secretario: Manuel Fdez. Bordes
Tesorera: Mª Teresa Ortiz
Vocales: Ignacio Amor
David Cancio
Andrés Leal
Juan José Peña
Montserrat Ribas

Realización y Publicidad
EDICOMPLET, S.A.
Apolonio Morales, 27 • 28036 Madrid
Tel: 91 - 350.49.17 • Fax: 91 - 350.76.52

Imprime DGB
Distribuye JARPA

Suscripción anual: 6.000 pts.
Número suelto: 2.000 pts.
Ejemplar gratuito para los miembros de la Sociedad Española de Protección Radiológica (SEPR)

La revista de la SOCIEDAD ESPAÑOLA DE PROTECCION RADIOLOGICA es una publicación técnica y plural que puede coincidir con las opiniones de los que en ella colaboran, aunque no las comparta necesariamente.

Depósito Legal: 17158
ISSN: 1133-1747

SUMARIO

✔ Editorial 5

✔ Colaboraciones

• **BIOCINETICA PULMONAR** 7
"Estudios de biocinética pulmonar de plutonio y americio asociados a partículas de suelo"
A. Espinosa, A. Aragón, J. Martínez y C.E. Iranzo

• **MEDICINA NUCLEAR DIAGNOSTICA** 18
"Dosis impartida al paciente en medicina nuclear diagnóstica"
J. Bea Gilabert, J. F. Martí Vidal

• **CONTROL DE EFLUENTES** 27
"Limitación, vigilancia y control de efluentes radiactivos en las centrales nucleares españolas"
L. Mª Ramos Salvador

• **CONSECUENCIAS ECONOMICAS DE ACCIDENTES** 40
"La evaluación de consecuencias económicas de los accidentes nucleares, una puesta al día"
E. Gallego Díaz

✔ Contribución invitada
"Aspectos éticos de la gestión de los riesgos radiológicos" 52
A. Surgier

✔ Noticias S.E.P.R. 63

✔ Informaciones de interés 82

✔ Convocatorias 92

✔ Publicaciones 93

ENTIDADES COLABORADORAS

AGFA

HELGESON SCIENTIFIC SERVICES, S.A.

LAMSE, S.L.
LABORATORIO Y MANTENIMIENTO DE SISTEMAS ESPECIALES

AMYS

PHILIPS

IBERDROLA

enresa

PROINSA

INITEC

emusa

SGS Grupo SGS Ciat
TECNOS Garantía de Calidad, S. A.

GEOCISA
GEOTECNIA Y CIMIENTOS, S.A.

SIEMENS

H. Cornic, S.L.
INSTRUMENTOS CIENTIFICOS E INDUSTRIALES

Kodak

3M

ESTUDIOS DE BIOCINÉTICA PULMONAR DE PLUTONIO Y AMERICIO ASOCIADOS A PARTÍCULAS DE SUELO

El presente estudio tiene como primordial objetivo el conocimiento del comportamiento biológico de los isótopos de plutonio y americio asociados a partículas de suelo a consecuencia de un accidente aéreo que generó oxidos de Plutonio, así como su clasificación en relación a su comportamiento en contaminación interna por inhalación.

Para la consecución de este fin dos líneas de trabajo fueron diseñadas:

Obtención de las diferentes fracciones granulométricas del suelo contaminado.

Caracterización mineralógica de las mismas y posterior estudio de la asociaciones geoquímicas de plutonio y americio a lo largo de más de 22 años de permanencia en contacto con los componentes del suelo.

Determinación de parámetros biocinéticos de plutonio y americio asociados a distintas fracciones granulométricas de suelo mediante la realización de experimentos "in vivo" e "in vitro" y la comparación de los resultados obtenidos en ambos. Los experimentos "in vivo" han sido realizados por NRPB (UK) y los experimentos "in vitro" en CIEMAT (España); en ambos casos se han utilizado las fracciones de suelo obtenidas y caracterizadas en CIEMAT. Con los parámetros obtenidos se han calculado factores de dosis por inhalación y límites de incorporación anual (LIA) específicos de la zona estudiada.

En el presente trabajo sólo se incluyen las determinaciones y experimentos realizados en CIEMAT.

A. Espinosa, A. Aragón, J. Martínez y C.E. Iranzo
CIEMAT-IMA-UGIA
Avda. Complutense, 22
28040 Madrid

The object of this study is to determine the biokinetic parameters of different Plutonium isotopes and Americium inhaled in the state in which they are found in the environment as a result of their deposition in the soil, from an aviation accident that generated different plutonium oxides.
To achieve this objetive, two lines of work were planned.
One was the determination of the mineralogical composition and associations that plutonium and americium present in that soil 22 years after the nuclear accident.
Other studies were directed to determine the biokinetic of the plutonium isotopes and americium (contained in the dust) deposited tracheally and inhaled by laboratory animals (rats) and in vitro experiments by pulmonary leaching simulation. The in vivo tests have been developed in NRPB (U.K.) and the in vitro experiment, geochemical associations studies, assessment of internal doses to humans resulting from intake of plutonium and americium bearing dusts present in the contaminated area and establishment of ALIs for inhalation, were carried out in CIEMAT (Spain).
In this work only determinations and experiments carried out by CIEMAT are included as a part of the EU Proyect "INHALATION AND INGESTION OF RADIONUCLIDES" contract: FI3P-CT920064a.

INTRODUCCIÓN

A consecuencia del accidente aéreo que tuvo lugar en Palomares (Almería) en Enero de 1966, en el que se generaron óxidos de plutonio debido a la ignición de parte del material perteneciente a dos bombas termonucleares, permaneció, después de efectuadas las labores de descontaminación pertinentes, una contaminación residual de estos óxidos, que a lo largo de los años ha ido interaccionando con los componentes del suelo.

La solubilidad biológica característica de los óxidos de plutonio es muy baja, sin embargo, las interacciones producidas durante este largo periodo de tiempo de permanencia en contacto con los componentes del suelo, pueden haber modificado este comportamiento de los isótopos de plutonio y sus descendientes (Am^{241}), al haberse formado otros compuestos de estos radionucleidos.

El propósito de este trabajo de investigación ha sido analizar el suelo de la zona de Palomares en el que existe contaminación de plutonio y americio con el fin de obtener un buen conocimiento geoquímico de los mismos, a la vez que poder determinar los porcentajes de disolución de los radionucleidos en una simulación de fluidos pulmonares. Estos porcentajes de disolución permiten establecer la clase de compuestos existentes, según los criterios de ICRP, para el caso de contaminación por inhalación ocasionada por fenómenos de resuspensión natural o antropogénica (principalmente por prácticas agrícolas) en zonas contaminadas.

La información obtenida con estos experimentos es necesaria para realizar una correcta evaluación de la retención biológica de la asociación radionucleido-suelo en el pulmón tras una contaminación interna por inhalación, su paso a sangre y otros órganos, así como la fracción de la misma que se espera sea

excretada por orina. La interpretación de los datos de bioeliminación y el cálculo de dosis internas debidas a contaminación por inhalación se realizan de igual manera a partir del comportamiento biológico observado.

CARACTERIZACIÓN DE SUELO

Separación granulométrica

Diferentes fracciones granulométricas de muestras de suelos fueron obtenidas en los laboratorios de geología del CIEMAT mediante técnicas de maceración y dispersión ultrasónica en los siguientes rangos de tamaño de partícula:

$\Phi \geq 1000 - 250 - 125 - 63 - 40 - 20 - 10 - 5 \geq \mu m$

Las fracciones mayores de 63 µm fueron obtenidas por técnicas de tamizado con posterior lavado de las mismas, y las menores de 63 µm mediante el clasificador de aire "British Rema", utilizando un valor de densidad media de 2.7g/cc.

Análisis radioquímicos

Los análisis radioquímicos de plutonio y americio han sido realizados siguiendo procedimientos específicos normalizados del Instituto IMA (1). La determinación de concentración de actividad se ha realizado mediante medida en un espectrómetro alfa, con detectores de barrera de silicio de bajo fondo y alta resolución, calibrado en energías en el rango 4-6 MEV con patrones de OAK-RIDGE National Laboratory. La recuperación radioquímica se ha calculado mediante la utilización de estandar interno de Pu^{236}, Pu^{242} y Am^{243} (Amershan).

TABLA 1
DISTRIBUCIÓN GRANULOMÉTRICA DEL SUELO Y DISTRIBUCIÓN DE ACTIVIDAD EN CADA FRACCIÓN

Fracción del suelo	Arcillas <5µm	Limos 5 - 63µm	Arenas > 63µm
Abundancia (%)	8,70	54,6	36,5
Actividad (%)	2,32	63,1	34,5
Actividad específica relativa [actividad (%)/abundancia (%)]	0,26	1,15	0,94

Elección de muestras para los estudios realizados

El material utilizado ha sido seleccionado de las diferentes fracciones granulométricas procedentes de la zona de Palomares siguiendo dos criterios primordiales:

- Partículas menores de 5µm, que constituyen la fracción mas importante para la contaminación interna del hombre, ya que al ser respiradas su depósito se realiza en las partes mas profundas del pulmón (partes bajas de bronquios, bronquiolos y alveolos pulmonares), no pudiendo ser eliminadas del mismo por procesos mecánicos. Su permanencia en el pulmón está condicionada a la solubilidad del compuesto en los líquidos tisulares (transportabilidad).

- Fracciones granulométricas mayores de 5µm seleccionadas por su alta actividad específica en plutonio y americio. Estas fracciones pueden ser inhaladas, pero su depósito se efectúa en las partes más altas del aparato respiratorio y, en estas condiciones, gran parte de ellas son eliminadas por fenómenos de exhalación y deglución o bien a través del mucus.

Siguiendo estos criterios las fracciones seleccionadas fueron:

Muestra 1: Φ <5µm
Muestra 2: 125 <Φ <250µm
Muestra 3: 20 <Φ <40µm
Muestra 4: Muestra total del suelo

TABLA 2
COMPOSICIÓN MINERALÓGICA DE LAS FRACCIONES GRANULOMÉTRICAS DEL SUELO

Tamaño (µm)	Clorita d(Å)-14	Illita Moscovita d(Å)-10	Cuarzo d(Å)-4,24	Calcita d(Å)-3,03	Dolomita d(Å)-2,88
< 5 µm	67,39	46,48	6,65	100,00	5,42
5 < Φ > 10	58,70	72,24	11,97	76,78	10,54
10 < Φ > 20	58,70	59,62	21,51	61,30	7,53
20 < Φ > 40	84,78	97,18	55,43	65,33	24,90
40 < Φ > 63	62,22	100,00	58,09	39,00	100,00
63 < Φ > 250	80,43	93,43	84,92	49,54	54,81
250 < Φ > 1000	41,30	33,80	100,00	73,99	19,58

Determinaciones granulométricas químicas y mineralógicas

Los componentes mayoritarios del suelo son arenas y limos, la proporción de arenas (Φ >63 µm) es de un 36.5% frente a un 54.6% de limos (63 µm > Φ> 5 µm) y un 8.7% de arcillas (5 µm > Φ). La distribución de actividad en arenas, limos y arcillas y su relación con la abundancia de estas fracciones se muestran en la tabla 1.

La composición química y parámetros fisico-químicos (macroconstituyentes aniónicos y catiónicos) fueron determinados en muestras de suelos y aguas resultantes de maceración y lixiviación de los mismos, mediante técnicas de plasma, cromatografía iónica, fluorimetría y absorción atómica entre otras. El Eh, pH y la conductividad se midieron en aguas de elutriación de los suelos.

Los análisis mineralógicos se realizaron mediante técnicas de microscopía óptica y difracción de rayos X (2). La segunda técnica se utilizó para analizar cada una de las fracciones granulométricas. El análisis mineralógico cuantitativo se basó en la intensidad de las bandas del espectro, dando un valor arbitrario de 100 a la mayor intensidad.

Los estudios químicos y mineralógicos mostraron que las especies químicas predominantes en cada una de las fracciones granulométricas son SiO_2, Al_2O_3, CaO, Fe_2O_3 y CO_3^{2-} y los minerales más abundantes cuarzo, calcita, dolomita, clorita y moscovita-illita (tablas 2 y 3). Puede encontrarse una información más detallada en las referencias (3 y 4).

La concentración de actividad de plutonio y americio en cada muestra fue determinada mediante análisis radioquímico en distintas alícuotas de la extracción llevada a cabo sobre 10g de suelo previamente homogeneizado.

La actividad específica de cada una de las muestras seleccionadas se muestran en la tabla 4. La muestra 2, previamente a

TABLA 3
PRINCIPALES COMPONENTES QUÍMICOS DEL SUELO

Compuesto	SiO_2	Al_2O_3	CaO	Fe_2O_3	SO_4^{2-}	MgO	K_2O	CO_3^{2-}
Abundancia (%)	44,0	12,5	14,8	3,8	1,1	2,1	2,6	15,9

su utilización para experimentos in vivo, fué molida hasta obtener un alto porcentaje en partículas <5µm. La fracción respirable (<5µm) así obtenida presentó una actividad específica menor a la de la muestra de procedencia como consecuencia de los distintos procesos a los que tuvo que ser sometida.

EXPERIMENTO "IN VITRO" DE SIMULACIÓN PULMONAR

El fin primordial de este experimento fué la obtención de parámetros de biocinética pulmonar (mediante simulación in vitro) de plutonio y americio asociado a suelo. Pequeñas cantidades (0.3g) de cada una de las muestras de suelo seleccionadas según el apartado 1.3 fueron introducidas en un tubo de membrana semipermeable sellado en los dos extremos. Cada tubo de membrana se situó dentro de un recipiente de plástico con 400ml de una solución fisiológica a pH de 7.3. Cada recipiente permaneció cerrado e introducido dentro de un baño termostático a 37ºC de temperatura y sometido a un proceso de agitación durante treinta minutos cada dos horas y media con el fin de simular las condiciones fisiológicas del pulmón. Cada semana la solución utilizada fué reemplazada por otra de reciente preparación. Los líquidos así obtenidos junto con los residuos finales, fueron analizados para determinar su concentración en radionucleidos utilizando técnicas radioquímicas.

La composición química de la solución fisiológica empleada, estaba compuesta por sales minerales (NaCl, NH_4Cl, NaH_2PO_4, $CaCl_2$), aminoácidos (glicina, Na_3Cit) y H_2SO_4 disueltos en agua destilada y desionizada (5).

TABLA 4
ACTIVIDAD ESPECÍFICA DE LAS FRACCIONES GRANULOMÉTRICAS DEL SUELO

Fracción granulométrica	Abundancia (%)	Actividad específica (Bq/g)	Abundancia en actividad (%)
< 5 µm	8,8	504+14	2,3
$5 < \Phi > 10$	11,4	1333+79	8,0
$10 < \Phi > 20$	8,8	1056+67	4,8
$20 < \Phi > 40$	23,7	3370+210	41,9
$40 < \Phi > 63$	10,8	1504+82	8,5
$63 < \Phi > 125$	13,9	2183+99	15,8
$125 < \Phi > 250$	4,6	6389+315	15,4
$250 < \Phi > 1000$	2,9	904+42	1,4
$\Phi > 1000$	15,2	254+9	2,0

TABLA 5
PROCEDIMIENTO DE LIXIVIACIÓN SECUENCIAL

Fracción extraída	Reactivo
Absorbida específicamente	0,05M Ácido acético
Ligada a M. O.	0,01M $Na_4P_2O_7$
Ligada a óxidos y sesquióxidos	0,175M $(CO_2NH_4)2$/0 1M $(CO_2H_2)_2$
Residual	7,8M HNO_3
Residual (fuertemente ligada)	$HF + HNO_3$

En una primera etapa, el experimento (utilizando la fracción de suelo <5µm) se prolongó durante tres meses, observándose que el porcentaje total lixiviado no excedió del 0.5% del plutonio total contenido en la muestra (ver figura 1). Una segunda etapa de simulación se llevó a cabo con otras dos alícuotas de la fracción <5µm durante un año. En las primeras semanas de este experimento fueron extraídos porcentajes similares de $Pu^{239+240}$ y Am^{241}, siendo mayor la cantidad extraída de Pu^{238} (ver figuras 2 y 3). Los porcentajes lixiviados, durante los primeros 140 días, de $Pu^{239+240}$ y Am^{241} fueron 0.58% y 0.32% respectivamente, y del 2% para el Pu^{238}.

Seis meses después de iniciado el experimento, la solución fisiológica utilizada en una de las alícuotas de la muestra <5µm fue reemplazada por sucesivos reactivos específicos, con el fin de establecer las asociaciones geoquímicas de los radionucleidos no extraídos en el experimento de lixiviación pulmonar. La misma extracción secuencial se realizó en la segunda muestra después de permanecer ésta durante un año en el experimento de simulación pulmonar. El procedimiento de lixiviación secuencial utilizado fué el descrito por McLaren y Crawford (6) y modificado por otros

TABLA 6
COEFICIENTES DE CORRELACIÓN (multiplicativos) ENTRE LA CONCENTRACIÓN DE ACTIVIDAD DE $Pu^{239+240}$ Y LOS MINERALES

Muestra	Clorita	Moscovita	Cuarzo	Calcita	Dolomita
1	0,82	0,90	-0,03	-0,56	0,45
2	0,85	0,90	0,31	-0,49	0,50
3	0,87	0,88	0,03	-0,55	0,50
4	0,97	0,74	-0,08	-0,15	0,21
5	0,75	0,41	-0,13	0,03	-0,07

autores (7-9). Un esquema del mismo se muestra en la tabla 5.

DISCUSIÓN DE LOS RESULTADOS

Esta lixiviación secuencial realizada en dos alícuotas de la fracción <5µm (seis meses y un año después de iniciado el experimento de simulación pulmonar) mostró que las fracciones específicamente adsorbida y ligada a materia orgánica se habían reducido, llegando casi a desaparecer tras un año de simulación pulmonar. Estos resultados sugieren que las formas, intercambiable, específicamente adsorbida y ligada a materia orgánica, de los radionucleidos presentes en el suelo son las que con más facilidad se solubilizan mediante una solución fisiológica (ver figura 7). Estas fracciones representan menos del 4% de $Pu^{239+240}$ y 8% de Pu^{238} contenido en la muestra de suelo total.

Es importante señalar que los resultados del experimento de simulación pulmonar llevado a cabo con la fracción respirable (tres alícuotas) indican que la extracción de Pu^{238}, especialmente durante las cuatro primeras semanas, fué mayor que la extracción obtenida de $Pu^{239+240}$. Este fenómeno no se observó en las lixiviaciones pulmonares realizadas con las otras fracciones del suelo (ver figuras 4, 5 y 6). Una posible explicación a este hecho podría encontrarse en los trabajos realizados por Garland et al., (10) donde se justifica la mayor solubilidad de los óxidos de Pu^{238} respecto a la de los óxidos de Pu^{239} contenidos en

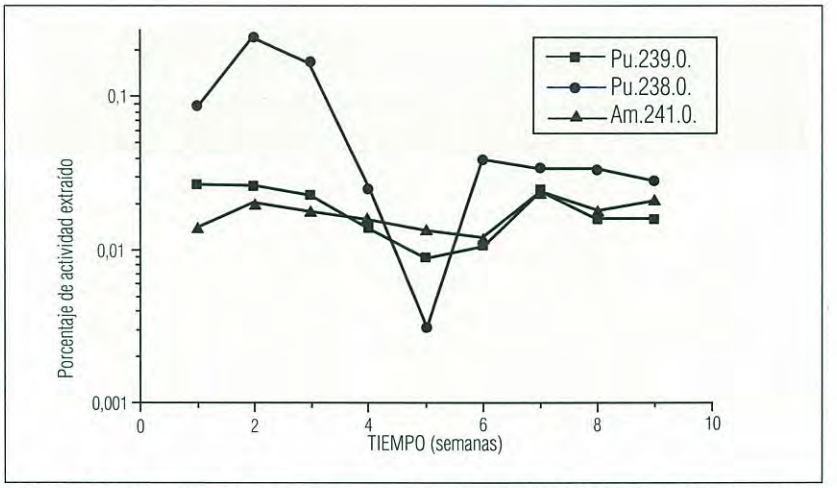


Figura 1. *Porcentaje de actividad extraído en función del tiempo. Fracción respirable del suelo 0.*

TABLA 7
CLASIFICACIÓN DE LOS RADIONUCLEIDOS ESTUDIADOS SEGÚN SU COMPORTAMIENTO BIOLÓGICO

Tipo ICRP 30 (66)	$Pu^{239+240}$	Am^{241}
Y (S)	87%	92%
W (M)	13%	8%

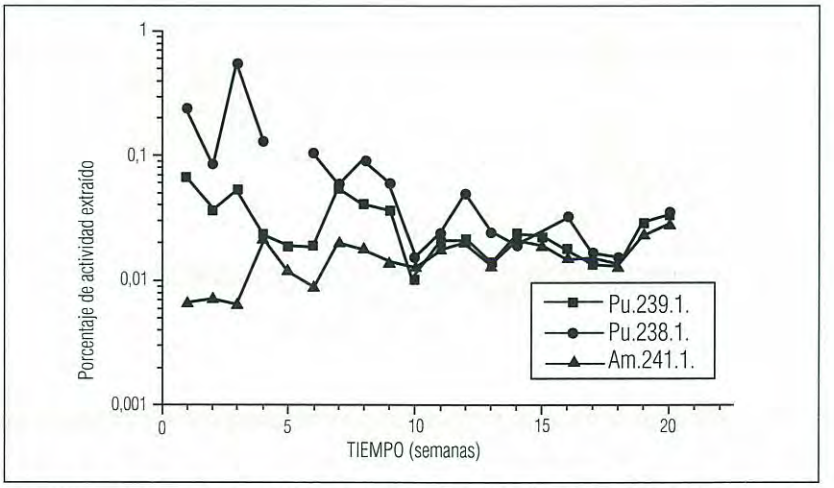


Figura 2. *Porcentaje de actividad extraído en función del tiempo. Fracción respirable del suelo 1.*

TABLA 8
FACTORES DE DOSIS EFECTIVA COMPROMETIDA PARA LA POBLACIÓN DE PALOMARES

Dosis comprometida efectiva mSv/Bq inhalado

isótopo	Niños (0-6 años)	niños (6-12)	adultos
$Pu^{239-240}$	0,15	0,09	0,06
Am^{241}		$7,4 \times 10^{-3}$	$8,6 \times 10^{-4}$

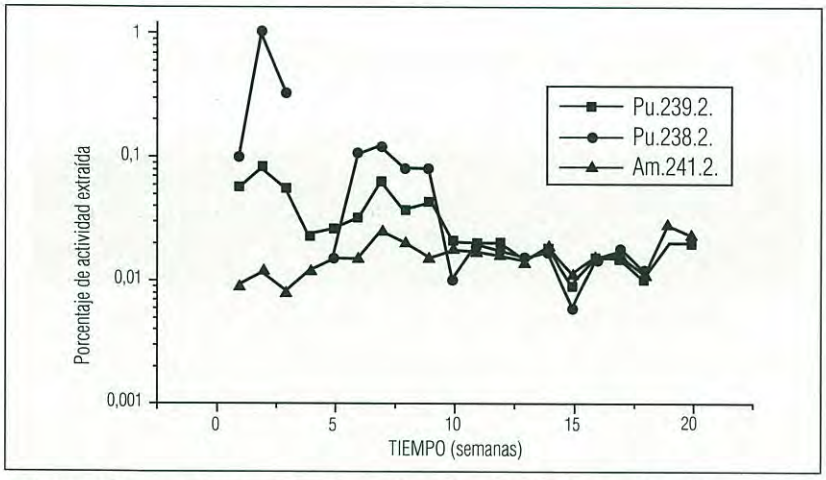


Figura 3. *Porcentaje de actividad extraído en función del tiempo. Fracción respirable del suelo 2.*

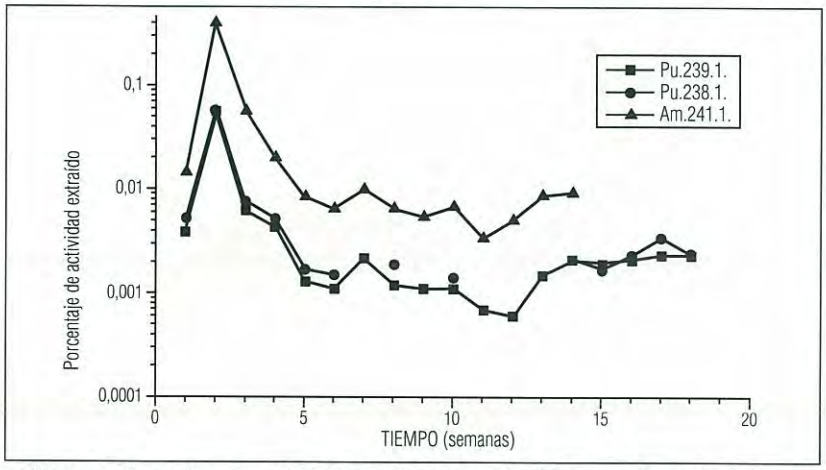


Figura 4. *Porcentaje de actividad extraído en función del tiempo. Fracción del suelo entre 20-40 micras.*

muestras de suelo, por la presencia de fenómenos de radiólisis producidos en algunos cristales, en los que se encuentra atrapado el radionucleido, como consecuencia de la mayor actividad específica del Pu^{238} (270 veces mayor que la del Pu^{239}).

El porcentaje de actividad extraída durante el experimento de simulación pulmonar para la fracción respirable, durante las seis primeras semanas, fue muy similar para $Pu^{239+240}$ y Am^{241}, siendo el porcentaje extraído de Pu^{238} cuatro veces mayor al de los anteriores radionucleidos. La diferencia se acentúa si unicamente tenemos en cuenta las tres primeras semanas.

Las figuras 4, 5 y 6 muestran los resultados obtenidos con las muestras 2, 3 y 4 respectivamente. En cada uno de los casos se evidencia el similar comportamiento de los isótopos de plutonio y del Am^{241}(procedente del decaimiento del Pu^{241}), si bien la fracción de actividad extraída es mayor en el caso del Am^{241}. Este hecho es contrario a lo observado en la fracción respirable, donde el radionucleido más soluble resultó ser el Pu^{238}.

El diferente comportamiento de la fracción respirable del suelo de Palomares en los experimentos de simulación podría ser justificado por su diferente composición mineralógica (ver tabla 2). Factores de correlación entre la concentración de actividad de plutonio en cada fracción granulométrica y la abundancia de los minerales mayoritariamente pre-

sentes en dichas fracciones fueron calculados en varias muestras y se muestran en la tabla 6. Estos factores indican la existencia de una buena correlación entre el nivel de actividad de plutonio y la abundancia de minerales como clorita e illita-moscovita. Ambos son filosilicatos formados por hojas de 14 y 10 (Ångströms de espesor respectivamente, unidas entre sí por cationes como K, Na, Fe, Mg. El plutonio y americio podrian estar adsorbidos en la superficie de estos minerales, si bien una proporción de los mismos podrían estar ocluídos o atrapados dentro de la estructura de la red cristalina, de acuerdo con los datos obtenidos mediante la extracción realizada después de un ataque con $HF-HNO_3$ durante el procedimiento de extracción secuencial.

Teniendo en cuenta la clasificación de los distintos compuestos de los radionucleidos definidas en ICRP, según el comportamiento de los mismos en contaminación interna, y utilizando los resultados obtenidos en los experimentos de simulación pulmonar "in vitro", se ha estimado la clasificación de la fracción inhalable de la asociación suelo-radionucleido en Palomares para los distintos isótopos de plutonio y americio. Esta clasificación se muestra en la tabla 7.

Los factores de Dosis Efectiva Comprometida específicos (F_{dec}) para la zona de Palomares, calculados a partir de la clasificación realizada tras los estudios de simulación pulmonar, utilizando las recomendaciones de ICRP son:

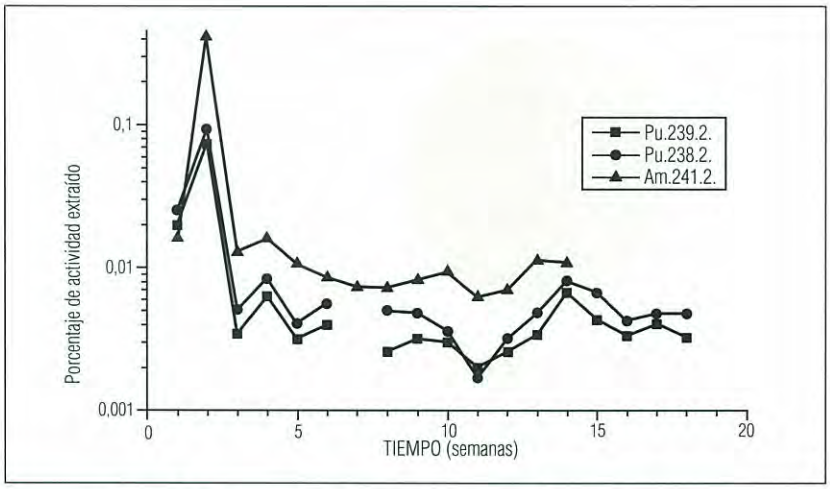


Figura 5. *Porcentaje de actividad extraído en función del tiempo. Fracción 125-250 micras.*

F_{dec} $Pu^{239+240}$ = 0,0645 mSv/Bq inhalado

F_{dec} $Am^{241}+Pu^{241}$ = 0,0008 mSv/Bq inhalados de Pu^{241} (calculados de forma indirecta a través del Am^{241} excretado).

LIMITE DE INCORPORACION ANUAL

El límite de incorporación anual (LIA) más restrictivo para el público (adultos) expuesto a inhalación de aerosoles contaminados (AMAD de 1 µm) por plutonio en el área de Palo-

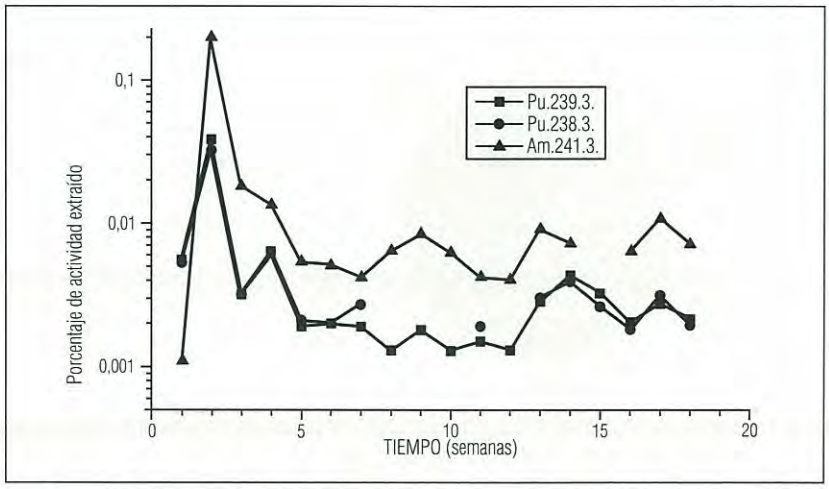


Figura 6. *Porcentaje de actividad extraído en función del tiempo. Fracción total del suelo.*

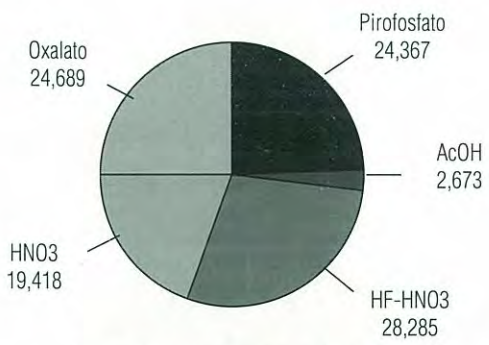


Fig. 7a. Porcentaje extraído de Pu-239 (S1)

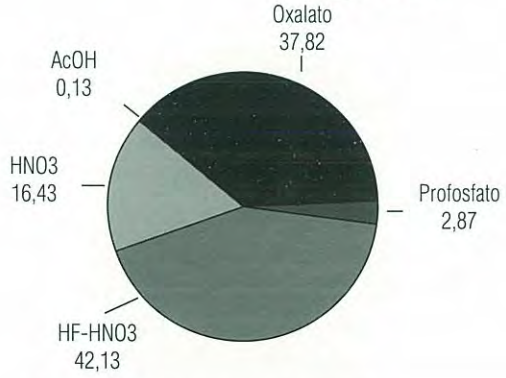


Fig. 7b. Porcentaje extraído de Pu-239 (S2)

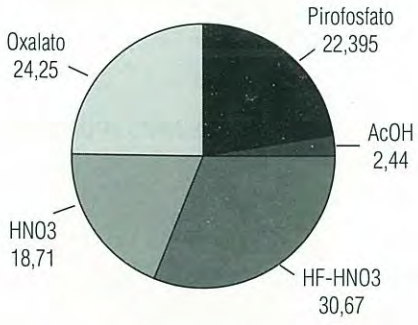


Fig. 7c. Porcentaje extraído de Pu-238 (S1)

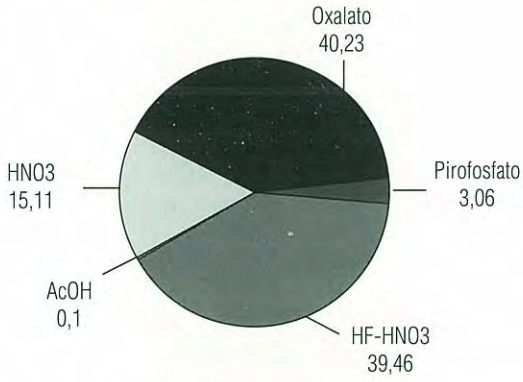


Fig. 7d. Porcentaje extraído de Pu-238 (S2)

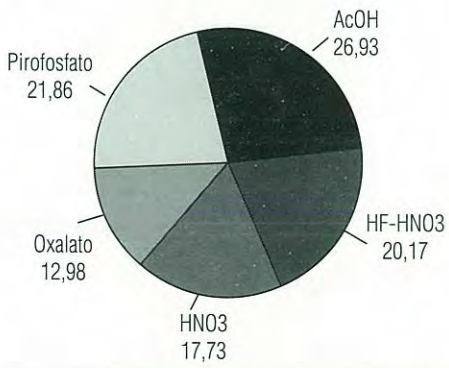


Fig. 7e. Porcentaje extraído de Am-241 (S1)

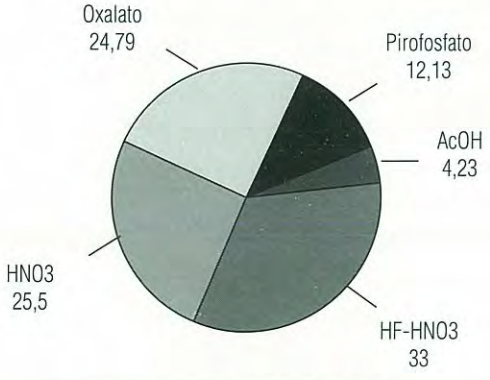


Fig. 7f. Porcentaje extraído de Am-241 (S2)

Figura 7. *Porcentaje de actividad extraída con cada reactivo al aplicar el método de extracción secuencial después de seis meses (S_1) y un año (S2) de simulación pulmonar.*

mares, es de 15,5 Bq año^{-1}, correspondiente a una dosis efectiva comprometida (DEC) de 1mSv año^{-1}. Si se considera el nuevo modelo pulmonar (ICRP 66), para el $Pu^{239+240}$ el factor de dosis efectiva comprometida es 0.0108 mSv/Bq y el límite anual de incorporación pasa a ser de 45 Bq, que corresponde a una DEC de 1mSv año^{-1}. En la tabla 8 se muestran los factores de dosis específica de los radionucleidos presentes en Palomares teniendo en cuenta un diámetro aerodinámico medio de partícula de 1µm para las diferentes edades de la población.

AGRADECIMIENTOS

Los autores desean agradecer la especial colaboración prestada en estos estudios por los doctores Berta de la Cruz y Pedro Rivas (CIEMAT). También desean agradecer la financiación recibida a través de ENRESA y de la CE (proyecto de investigación "INHALATION AND INGESTION OF RADIONUCLIDES" FI3P-CT920064a) para llevar a cabo los trabajos aquí expuestos.

BIBLIOGRAFÍA

1. A. Espinosa, C.E. Iranzo. Procedimientos específicos para la determinación secuencial de $Pu^{239+240}$ y Am^{241} en muestras ambientales. CIEMAT-MA04. Revisión 1.

2. A. Parfenoff et al.. Les minéraux en grains. Méthodes d'étude et détermination. Masson et Cie (1970.

3. E. Mingarro, E. Iranzo, S. Salvador, C.E. Iranzo and P. Rivas. "Geochemical distribution of plutonium and americium in Palomares soil". Cycling of long-lived radionuclides in the biosphere. Observations and models, 2, 392-419 (1987)

4. P. Rivas, E. Iranzo, E. Mingarro, C. Marín, A. Espinosa and C.E. Iranzo. Distribution and migration of plutonium in soils of an accidentally contaminated environment. Radiochimica Acta 52/53, 249-256. (1991).

5. G.M. Kanapilly et al.. Measurement of an in-vitro dissolution of aerosol particles for comparison to in-vivo dissolution in the lower respiratory tract after inhalation. Health Phys. 24: 497-507 (1973).

6. R.G. McLaren, D.V. Crawford. Studies on soil copper. Y. The fractionation of copper in soils. J. Soil Sci. 24 (2), 174-181 (1973).

7. K.L. Iu et al.. Influence of water logging and time or organic matter additions on the distribution of trace metals in an acid soil.J. Manganese and Iron. Plant and Soil 59, 317-326 (1981)

8. G.T. Cook et al.. Geochemical association of plutonium in the Caithness environment. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. 223 517-522 (1984).

9. Antón, A. Aragón. Procedimiento para la especiación de plutonio y americio en muestras de sedimento/suelo. Procedimiento específico nº PR-X3-05.

10. Garland and R.E. Wildung. Physicochemical characterization of mobile plutonium species in soils. In Biological implications of metals in the environment. CONF-750929, NTIS. (1977)