

TESIS DOCTORAL

Análisis de la transferencia de radionucleidos naturales desde diversos suelos tipo al trigo. Influencia del uso de enmiendas basadas en subproductos NORM

JUAN GABRIEL MUÑOZ MUÑOZ

PROGRAMA DE DOCTORADO EN MODELIZACIÓN Y EXPERIMENTACIÓN EN CIENCIA Y TECNOLOGÍA



TESIS DOCTORAL

Análisis de la transferencia de radionucleidos naturales desde diversos suelos tipo al trigo. Influencia del uso de enmiendas basadas en subproductos NORM

JUAN GABRIEL MUÑOZ MUÑOZ

PROGRAMA DE DOCTORADO EN MODELIZACIÓN Y EXPERIMENTACIÓN EN CIENCIA Y TECNOLOGÍA

La conformidad de los Directores de la tesis, consta en el original en papel de esta tesis doctoral:

Fdo. Francisco Javier Guillén Gerada

Fdo. Alejandro Salas García

Agradecimientos

En primer lugar, quiero agradecer a mis directores de tesis Francisco Javier Guillén Gerada y Alejandro Salas García por su motivación y orientación durante todo este trayecto. Agradecer el apoyo que han mostrado cada vez que me surgía una dificultad, que sin ellos no hubiera podido resolver.

Al Dr. Antonio S. Baeza Espasa, director del LARUEX, que me dio la oportunidad de realizar este trabajo utilizando los recursos del laboratorio. Así mismo, la tesis se ha podido llevar a cabo gracias al proyecto concedido en 2011 por el Ministerio de Ciencia e Innovación, MICIIN, referencia FIS2011-29788, dentro del subprograma de proyectos de investigación fundamental no orientada.

También quiero agradecer a todos mis compañeros, que por suerte son muchos, la comprensión que me han dado a lo largo de todos estos años.

A mis amigos y a toda mi familia, en especial a mi hermana, les agradezco el ánimo que he recibido por parte de cada uno de ellos durante todo este tiempo.

A mis padres, que gracias a su trabajo y sacrificio me han permitido llegar hasta aquí. Por el interés mostrado, sobre todo durante la última etapa de la tesis, que me preguntaban prácticamente todas las semanas "¿te tienen que corregir mucho Javi y Alex?", estaban deseando que la depositara.

Por último, a mi mujer, sin ella no hubiera podido llegar hasta el final, mostrándome en los momentos más difíciles todo su apoyo, que junto con el nacimiento de nuestra hija Carlota, me dieron muchísima fuerza para dar el último empujón. Al final, sí vimos la luz.

Por todo ello, y a todos ellos, gracias.

Índice

1.	Intr	troducción	1
2.	Obj	ojetivos	7
3.	Mét	étodos de cultivo	11
	3.1.	Hidroponía	11
	3.2.	Plántulas	12
	3.3.	Condiciones de producción agrícola	13
4.	Res	sultados	17
	4.1.	Caracterización de los medios de cultivo	17
	4.1. natu	1.1. Parámetros físico-químicos y concentración de radionucleid turales de las aguas utilizadas en los cultivos.	
	4.1.	.2. Tratamientos para mejorar los cultivos	20
	4.1.	1.3. Caracterización de los suelos utilizados en las distintas expe	riencias 21
	4.1.	.4. Caracterización de la enmienda	26
	4.2. y el cá	Concentración de radionucleidos naturales y elementos estables cálculo de factores de transferencia según el método de cultivo	0 /
	4.2.	2.1. Hidroponía	30
	4.2.	2.2. Plántulas	35
	4.2.	2.3. Condiciones de producción agrícola	41
	4.2.4 de c	2.4. Análisis comparativo de la transferencia entre los diferentes cultivo	
	4.3.	Influencia del subproducto NORM en la transferencia suelo-pla	ıta 49
5.	Con	onclusiones	57
6.	Ref	ferencias	61

1.- Introducción

1. Introducción

Los radionucleidos naturales existen en la Tierra en cantidad significativa, y su expresión se reserva a los radionucleidos primigenios de ⁴⁰K, ²³⁵U, ²³⁸U, ²³²Th y sus descendientes. La radiación que proviene de fuentes naturales, representa el 87% de la exposición anual que recibe el ser humano, principalmente debido al ²²²Rn.

La concentración de estos radionucleidos en el suelo, depende en primera instancia del entorno geológico en el que se encuentren, ya que, los suelos están formados por una gran variedad de minerales que pueden estar constituidos o contener elementos radioactivos naturales. En España, se llevó a cabo el proyecto MARNA (Mapa de radiación gamma natural) entre el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) y ENUSA, en el que se evaluó la tasa de exposición a la radiación gamma de origen natural. De los resultados obtenidos se observa que existen zonas con predominio graníticos, cuyos contenidos radiactivos naturales son más elevados.

Por otra parte, las concentraciones de radionucleidos naturales en el medio ambiente, pueden verse modificadas por una serie de industrias denominadas NORM (Naturally occurring radioactive material), en las que se aumentan el contenido radioactivo de los residuos o subproductos que se generan durante los procesos industriales (IAEA 2004). Estos residuos o subproductos, se pueden originar en el procesamiento de metales, producción de fertilizantes, en la minería y combustión del carbón, en la producción de ácido sulfúrico, y el tratamiento de aguas residuales y aguas potables, entre otras industrias NORM. En concreto, durante el tratamiento de aguas potables, se generan lodos durante la potabilización de las aguas, que pueden tener concentraciones elevadas de radionucleidos naturales, debido a procesos industriales para su eliminación de aguas de consumo, como por ejemplo, uranio y radio, acumulándose éstos en los lodos.

En España, según datos del Registro Nacional de Lodos, se generan anualmente alrededor de 1.200.000 toneladas (en materia seca) de lodos de depuradora. Con respecto a su tratamiento y destino final, aproximadamente el 82 % de estos lodos se utilizan para mejorar las características físico-químicas de los suelos agrícolas, incrementando los niveles de materia orgánica y proporcionando los nutrientes necesarios para las plantas (www.miteco.gob.es). Cuando se enmiendan los cultivos con estos lodos, el objetivo principal es mejorar los niveles de algunos

nutrientes en el suelo. Pero hay que tener en cuenta que, existe una relación de ciertos radionucleidos naturales con estos lodos (Baeza et al., 2014), y su uso como enmienda pueden implicar la modificación de las concentraciones de éstos en los suelos.

Los radionucleidos, se transfieren del suelo a los cultivos y pasan a la cadena alimentaria mediante la absorción de éstos a través del sistema radicular (IAEA 1994), pudiéndose encontrar niveles significativos en los alimentos. El consumo de alimentos, es una de las principales vías de incorporación de radionucleidos a los seres humanos, pudiéndose producir dicha exposición de diferentes maneras: a) ingesta directa de alimentos por el ser humano; y b) por ingesta de productos animales que han sido criados con pastos con un alto contenido de cereales, entre otros vegetales. Como la mayoría de estos radionucleidos naturales son emisores α , su contribución a la dosis efectiva interna puede ser significativa, como se puede deducir del elevado valor de los coeficientes e (Sv/Bq) para el 234 U, 238 U, 226 Ra y 210 Po, de $^{4.9 \cdot 10^{-8}}$, $^{4.5 \cdot 10^{-8}}$, $^{2.8 \cdot 10^{-7}}$ y $^{1.2 \cdot 10^{-6}}$ Sv/Bq respectivamente (ICRP 2012).

Algunos estudios, consideran a los radionucleidos naturales como los principales responsables a la contribución de la dosis efectiva por ingesta, generalmente en lugares donde existe una baja concentración de radionucleidos antropogénicos (Tufail et al., 2010) (Guillén et al., 2017). Esta absorción de radionucleidos naturales por las plantas, es de gran importancia para evaluar la contribución de la dosis total interna por la radiación recibida en humanos (Sheppard et al., 1988) (Bunzl et al., 1999) (Pulhani et al., 2005).

En la naturaleza, podemos diferenciar entre elementos mayoritarios y minoritarios. Los elementos químicos mayoritarios, son los que condicionan la mayor parte de las reacciones químicas que se desarrollan, mientras que, los elementos químicos minoritarios serán más o menos importantes dependiendo de la similitud que tengan éstos con los elementos mayoritarios.

Los elementos mayoritarios, se encuentran en el suelo y son imprescindibles para el crecimiento de las plantas (Tang et al., 2017), cuyas concentraciones se relacionan a menudo con algunos radionucleidos al estudiar la adsorción de éstos en las raíces de las mismas (Million et al., 1994). La relación entre radionucleidos, en concentraciones másica de traza, y elementos estables mayoritarios, ha sido

estudiada por otros autores, en concreto, la afinidad del radio sobre la adsorción con otros metales alcalinotérreos (calcio, estroncio y bario) (Tagami et al., 2009) (Sheppard 1980).

El transporte y la acumulación de los radionucleidos naturales a las plantas, se evalúa mediante el parámetro de factor de transferencia, utilizándose como elemento esencial en algunos modelos predictivos de la evolución del contenido radiactivo del medio ambiente. Este parámetro, es una magnitud adimensional y se define como la relación entre la concentración de actividad del radionucleido en la planta (Bq/kg seco) y la concentración de actividad de ese radionucleido en el suelo (Bq/kg), expresándose el resultado en relación al peso seco (IAEA 2010). Existen diferentes parámetros que pueden influir en los factores de transferencia, tales como las características del suelo, las condiciones climáticas, el tipo de planta, la parte de la planta en concreto y la forma físico-química de los radionucleidos (Bettencourt et al., 1988).

Los cereales son uno de los alimentos más consumidos en España y en el resto del mundo, siendo uno de los pilares en la alimentación de la dieta mediterránea y abarcando una gran variedad de especies: trigo, arroz, maíz, cebada, avena, centeno, sorgo, triticale (híbrido entre trigo y centeno) y mijo. En España, la cosecha de cereales (campaña de comercialización 2020/21), se estima en 25.4 millones de toneladas. En trigo blando se han alcanzado los 7.1 millones de toneladas, en cebada 10.9 millones de toneladas, en maíz 4 millones de toneladas y en trigo duro 0.82 millones de toneladas (www.mapa.gob.es). El trigo, es el cereal más importante del mundo en términos de producción, usado para la alimentación humana y alimentación animal. El consumo per cápita mundial es el más alto de los cereales, con 67.2 kg anuales en el 2018 (FAO 2019), y las previsiones de la FAO sobre la producción mundial de trigo en 2021, puede alcanzar un nuevo récord superando los 785 millones de toneladas (FAO 2021). Existe una gran variedad de especies de trigo, pero la opción elegida es Triticum aestivum, conocido como trigo harinero, trigo pan o trigo blando, ya que es la especie con mayor superficie cultivada en el mundo con una producción total del 90-95% (Peña 2002).

Por ello, la presente tesis pretende evaluar el posible riesgo radiológico de utilizar un subproducto NORM como enmienda, en un cultivo básico para la alimentación humana, como es el trigo. Al utilizar estos subproductos, cuyas concentraciones de radionucleidos naturales son elevadas, puede existir un riesgo al aumentar la transferencia, acrecentando la concentración en la parte comestible.

Para poder analizar desde diversas perspectivas dicha transferencia, se han utilizado diferentes métodos de cultivo, todos ellos realizados en condiciones controladas de laboratorio: hidroponía, plántulas y cultivo en condiciones de producción agrícola. El método empleado en el cultivo de plántulas y en hidroponía, es el método de Neubauer (Neubauer 1923), utilizado con anterioridad para probar la transferencia de radionucleidos del suelo a la planta y la efectividad de las contramedidas agrícolas (Breban 2001) (Guillén et al., 2017).

2.- Objetivos

2. Objetivos

El objetivo general que pretende esta tesis, es analizar la influencia que el uso de enmiendas basadas en el uso de subproductos de industrias NORM puedan tener sobre la transferencia de radionucleidos naturales a plantas de cultivo, en concreto a los cereales. Para la consecución de este objetivo general se identificaron los siguientes objetivos concretos:

- Analizar la variabilidad de los diferentes métodos de cultivo en condiciones controladas, a fin de estudiar la influencia del tipo de medio de cultivo y su concentración radioactiva sobre la transferencia, siendo los métodos ensayados: a) cultivo hidropónico, b) cultivo de plántulas con una cantidad limitada de nutrientes, y c) cultivo en condiciones de producción agrícola.
- Evaluar la variabilidad que el tipo de suelo tiene sobre la transferencia suelo-planta en condiciones controladas de laboratorio utilizando un mismo método de cultivo (plántulas).
- Analizar la influencia que el uso de un subproducto NORM, cuyos niveles radiactivos distan de ser exentos, como enmienda de suelo en la transferencia suelo-planta de radionucleidos naturales para un único método de cultivo.

3.- Métodos de cultivo

3. Métodos de cultivo

3.1. Hidroponía

La hidroponía es un método de cultivo que se realiza en ausencia de sustrato agrícola, siendo éste reemplazado por un medio inerte. El medio de cultivo utilizado fue perlita expandida, cuya propiedad más importante es su gran capacidad de retención de agua.

En el cultivo hidropónico, el agua y una solución de nutrientes aportan todos los elementos necesarios para que una planta pueda desarrollarse. La solución de nutrientes utilizada, fue un fertilizante NPK, cuya composición es a base de nitrógeno (N), fósforo (P) y potasio (K), elementos necesarios para que las plantas puedan crecer y generar sus frutos. Es importante aclarar, que el porcentaje que corresponde a cada elemento, no se corresponden directamente a éstos, ya que el nitrógeno está expresado como N, el fósforo como pentóxido (P_2O_5) y el potasio como óxido (P_2O_5). Para estas experiencias, se eligió un fertilizante ecológico con un valor NPK de 3-3-5, un 0.05% de hierro y un 20% de materia orgánica.

Las experiencias, se realizaron sobre bandejas de plástico de 60 cm de longitud y 15 cm de anchura, en las que se sembraron 1000 semillas de trigo entre dos capas de perlita, para que se encontraran con la humedad necesaria durante la etapa de germinación.

Se realizaron dos experiencias, que se diferencian por el agua de riego empleada, ya que sus parámetros físico-químicos y su contenido radiactivo es distinto, cuyas características se muestran en las tablas 1 y 2 respectivamente: para una de ellas se utilizó el agua denominada A; y para la otra experiencia el agua denominada B. El riego, se efectuó mediante pulverización manual, utilizando para cada experiencia 182 mL de fertilizante y 6.5 L de agua. Transcurridos veintiún días desde la siembra, las plantas alcanzaron la fase de dos hojas (figura 1) y fueron recolectadas separando la raíz del tallo, limpiando de restos de perlita ambas partes con agua bidestilada.



Figura 1. Cultivo hidropónico en la etapa de siembra (a) y en la fase de dos hojas (b).

3.2.Plántulas

En las experiencias de plántulas se utilizó el método de Neubauer (Neubauer 1923), basándose en el crecimiento de plántulas de trigo en una cantidad limitada de tierra y por tanto de nutrientes, desde la fase de cariópside hasta la fase de dos hojas, durante un período de tiempo aproximado de tres semanas. Este método, se utiliza para comprobar la capacidad que tiene el suelo, para proporcionar los nutrientes necesarios para las plantas (Breban 2001).

Los ensayos se realizaron con diferentes tipos de suelos, utilizando recipientes de plástico que contenían 50 g de cada uno de ellos.

Los suelos se humedecieron hasta alcanzar el 90% de capacidad de campo (cc), se pesaron y se sellaron herméticamente con plástico transparente para evitar la pérdida de agua por evaporación.

A continuación, se colocaron 100 semillas de trigo en cada recipiente de plástico y se volvió a sellar herméticamente durante la primera semana, evitando pérdidas de humedad y de este modo facilitar la etapa de germinación. Cuando transcurrieron tres semanas desde el inicio de la siembra, las plántulas alcanzaron la fase de dos hojas (figura 2) y éstas fueron recolectadas. Se procedió del mismo modo que en hidroponía, se separó la raíz del tallo, y se limpiaron de las partículas de suelo adheridas a éstas con agua bidestilada.



a) Siembra

b) Diferentes etapas de crecimiento

Figura 2. Cultivo de plántulas durante la siembra (a) y en diferentes etapas de crecimiento (desde la fase de emergencia hasta la fase de dos hojas) (b).

3.3. Condiciones de producción agrícola

Para intentar simular un cultivo en condiciones reales, se utilizaron cubetas de plástico con una capacidad volumétrica de 49.5 L, rellenando las cubetas hasta una altura de 45 cm.

Para la distribución de semilla, se realizó una cuadrícula con el fin de obtener una distribución óptima de siembra, depositando 22 semillas por cubeta, siendo la densidad de siembra recomendada de 250 semillas por metro cuadrado (www.agroterra.com) (figura 3). Las experiencias se realizaron durante 6 meses para poder llegar a la fase final del trigo, obtención de grano. Finalmente, se separó la planta en cuatro partes: raíz, tallo, cascarilla y grano.

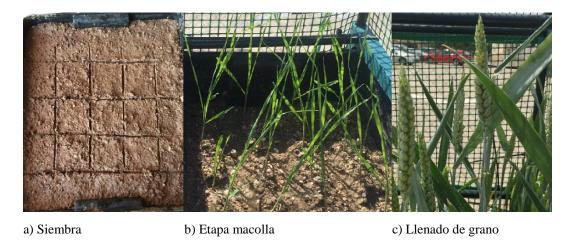


Figura 3. Experiencia en condiciones de producción agrícola durante la siembra (a), etapa macolla (b) y llenado de grano (c).

4.- Resultados

4. Resultados

4.1. Caracterización de los medios de cultivo

4.1.1. Parámetros físico-químicos y concentración de radionucleidos naturales de las aguas utilizadas en los cultivos.

Las aguas utilizadas en los diferentes cultivos, son dos aguas potables de diferentes orígenes, una de ellas de tipo superficial (agua A) y la otra de tipo subterráneo (agua B). Con esta selección, se ha pretendido buscar dos aguas que al mismo tiempo que fueran aguas aptas para el riego, tuvieran características físico-químicas y radiológicas diferentes.

En primer lugar, se verificaron mediante los parámetros físico-químicos, que las aguas eran aptas para el riego de los cultivos. Para ello, se analizaron los valores más importantes desde el punto de vista agrícola: pH, conductividad y el contenido de algunos de los elementos químicos esenciales para las plantas.

Los tres macronutrientes primarios requeridos por las plantas, son el nitrógeno, fósforo y potasio (N, P, K). Pero para que la adsorción por éstas sea la esperada, es preciso que estén presentes otros nutrientes, denominados macronutrientes secundarios y micronutrientes, entre los que se encuentran los bicarbonatos (C), cloruros (Cl) y sulfatos (S).

En la tabla 1, se muestran los parámetros físico-químicos de las dos aguas y los rangos establecidos para que un agua sea apta para riego (Ayers et al., 1985) (Pastor 2005). Se puede observar que, la conductividad y las concentraciones de bicarbonatos, cloruros y sulfatos, son superiores en el agua B. Con respecto al N, P y K, su contenido es similar en las dos aguas, excepto para el K, siendo superior en el agua A. Aunque la concentración de K en el agua A, se encuentra por encima del rango recomendado, un exceso de este elemento no genera toxicidad como tal para la planta (Pastor 2005). Por otra parte, la concentración de Cl en las aguas estudiadas, al estar por debajo del límite establecido, no genera toxicidad en el cultivo.

Con respecto a los sulfatos, compuestos indispensables para muchas reacciones que ocurren en las células, los valores obtenidos se encuentran dentro del rango idóneo

para agua de riego, aunque no existen efectos específicos de toxicidad producidos por altas concentraciones. Aparentemente, las altas concentraciones de este compuesto, no son capaces de reducir la adsorción de calcio en la planta (Urrestarazu 2004).

En relación a los bicarbonatos, un alto contenido de éstos conlleva un aumento en el índice de relación de adsorción de sodio (RAS ajustado). El RAS ajustado, es un parámetro de la calidad de agua de riego, que clasifica el agua por la presencia de Na con respecto al Ca y Mg, teniendo en cuenta la existencia de bicarbonatos. De modo que, un alto contenido de Na, puede afectar a la fertilidad del suelo al reducir la aireación, incrementar el pH y disminuir la disponibilidad de Fe y Zn. Si el índice de RAS ajustado se encuentra por encima de 9, existiría una restricción severa del agua para su uso en agricultura (Ayres et al., 1985) (Nakayama 1982), no siendo nuestro caso, debido a que el RAS para el agua A es 0.85 y para el agua B es 1.86.

Por último, la dureza del agua de riego es un factor que involucra al Ca y Mg, y define el agua como "blanda" o "dura". Una mayor dureza del agua, puede implicar un riesgo de precipitaciones y taponamientos del sistema de riego, y son poco recomendadas en suelos duros y compactos. Las dos aguas utilizadas en las distintas experiencias se denominan aguas blandas, ya que, su dureza se encuentra por debajo de 75 mg/L (6.59 mg/L para el agua A y 48.43 mg/L para el agua B) (Fernández Gómez et al., 1999).

Por ello, podemos afirmar que las aguas utilizadas para realizar los diferentes cultivos, son aptas para el riego.

Parámetro	Agua A	Agua B	Rangos aptos para
			riego
рН	7.5	8.3	6 – 8.5
Conductividad (µS/cm)	200	1082	0 - 3000
Bicarbonatos (mg/L)	41	351	0 – 610
Cloruros (mg/L)	28	172	0 – 1065
Sulfatos (mg/L)	27	114	0 – 960
N total (mg/L)	3.9	< 5.0	0 – 10
P total (mg/L)	< 0.025	< 0.025	0 - 2
K (mg/L)	4.25	1.77	0 - 2
Na (mg/L)	16	94	0 – 299
Ca (mg/L)	19	80	Dureza < 150
Mg (mg/L)	4.3	69	

Tabla 1. Parámetros físico-químicos de las aguas utilizadas en las diferentes experiencias y los rangos establecidos para que un agua sea apta para riego (Ayers et al., 1985; Pastor, 2005; Fernández Gómez et al., 1999).

Por otra parte, en la tabla 2, se puede observar que la diferencia de concentraciones entre las aguas de estudio es significativa, siendo superiores en el agua B en tres órdenes de magnitud para el ²³⁴U y ²²⁶Ra, y en 2-3 órdenes de magnitud para el ²³⁸U, por lo que el agua A tiene un menor contenido de radionucleidos naturales. Otro aspecto a destacar es la ratio isotópica ²³⁴U/²³⁸U, con una ratio de 5.8 en el agua B, lo que implica un desequilibrio de ambos isótopos. El desequilibrio isotópico del agua B, es frecuente en las aguas subterráneas, dependiendo de varios factores como, la geología de la zona y la profundidad del acuífero (Ivanovich 1982). Dicho desequilibrio, está provocado por el retroceso alfa de ²³⁴Th, enriqueciendo el agua de ²³⁴U en relación al ²³⁸U (Laul 1992). Por su parte en el agua A, el ²³⁴U y ²³⁸U se encuentran en equilibrio. Con respecto al ²¹⁰Po, la diferencia entre las dos aguas no es tan significativa como en el resto de radionucleidos, siendo el radionucleido con las concentraciones más bajas en ambas aguas.

Radionucleido	Agua A (Bq/L)	Agua B (Bq/L)
²³⁸ U	0.0009 ± 0.0003	0.039 ± 0.009
²³⁴ U	0.0005 ± 0.0002	0.227 ± 0.044
²²⁶ Ra	0.0008 ± 0.0002	0.146 ± 0.014
²¹⁰ Po	0.00022 ± 0.00009	0.0069 ± 0.0011

Tabla 2. Concentración de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en las diferentes aguas, expresadas en Bq/L.

4.1.2. Tratamientos para mejorar los cultivos

Fertilizante

En el presente estudio, únicamente fue necesario adicionar fertilizante en las experiencias hidropónicas, debido a la ausencia de sustrato y que las aguas no tienen los nutrientes necesarios para el desarrollo de las plantas (ver tabla 1). El fertilizante utilizado es del tipo NPK, descrito en el apartado 3.1, añadiendo 28 mL/L de agua, proporción recomendada por el fabricante (Vitaterra, greenmix-f).

En la tabla 3, se muestran las concentraciones de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en el fertilizante y su contribución en las diferentes aguas. Se observa que, las actividades de ²³⁸U y ²³⁴U aumentan en ambas aguas, siendo más notable en el agua A. El desequilibrio de ²³⁴U/²³⁸U en el agua B, cuando se adiciona el fertilizante disminuye de 5.8 a 1.5, debido al aporte de ²³⁴U y ²³⁸U por parte del fertilizante, con unas concentraciones de 2 – 3 órdenes de magnitud superior que en el agua B, posiblemente por encontrarse el uranio unido a fosfatos (Guillén et al., 2014). Con respecto al ²²⁶Ra y ²¹⁰Po, la contribución por parte del fertilizante en la disolución final, se considera poco significativa, ya que las concentraciones, con su incertidumbre asociada solapan con las iniciales del agua.

Radionucleido	Fertilizante	Agua A +	Agua B +
	(Bq/L)	Fertilizante (Bq/L)	Fertilizante (Bq/L)
²³⁸ U	11.6 ± 1.8	0.31 ± 0.05	0.35 ± 0.05
²³⁴ U	12.0 ± 1.8	0.32 ± 0.05	0.54 ± 0.06
²²⁶ Ra	0.0044 ± 0.0026	0.0009 ± 0.0002	0.142 ± 0.014
²¹⁰ Po	0.10 ± 0.06	0.0029 ± 0.0015	0.009 ± 0.002

Tabla 3. Concentración de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en el fertilizante y su contribución en las diferentes aguas, expresada en Bq/L.

<u>Inhibidor de insectos</u>

Como acción preventiva a posibles plagas de insectos en las condiciones de producción agrícola durante el período de reproducción, en la etapa de espigado, se pulverizó directamente sobre las hojas un inhibidor de insectos orgánico libre de componentes químicos. Esta acción, se repitió tres veces en cada experiencia,

suelos C y D, adicionando la cantidad recomendada por el fabricante (Vitaterra, greenmix-f) de 5-10 mL/L de agua, utilizando un total de 11 mL de inhibidor.

Para poder evaluar el posible efecto que este compuesto puede tener en la transferencia de radionucleidos al cultivo, se analizaron las concentraciones de los diferentes radionucleidos (tabla 4). Estas concentraciones, contribuyeron menos del 3% en las concentraciones finales de las distintas fracciones de la planta, por lo que el aporte no se consideró significativo.

Radionucleido	Inhibidor de insectos (Bq/L)		
²³⁸ U	0.19 ± 0.12		
²³⁴ U	0.21 ± 0.13		
²²⁶ Ra	0.09 ± 0.04		
²¹⁰ Po	0.39 ± 0.25		

Tabla 4. Concentración de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po del inhibidor de insectos, expresada en Bq/L.

4.1.3. Caracterización de los suelos utilizados en las distintas experiencias

Los suelos seleccionados para este estudio, fueron recolectados en ecosistemas mediterráneos, a priori cumpliendo con los requisitos físico-químicos para poder utilizarlos en las distintas experiencias. Se seleccionaron suelos con texturas diferentes y de ese modo poder evaluar dicha transferencia, desde suelos con distintos tamaños de partículas.

Inicialmente se seleccionaron tres suelos tipo que pertenecían a grupos texturales distintos, y un cuarto suelo con una clase de textura similar a uno de los anteriores, pero que se caracteriza por un mayor contenido radioactivo.

Para establecer la clase textural, se determina el porcentaje de arena, limo y arcilla, y de acuerdo con la clasificación de suelos del Departamento de Agricultura de los EE.UU (USDA) (www.nrcs.usda.gov) (figura 4), quedan clasificados como:

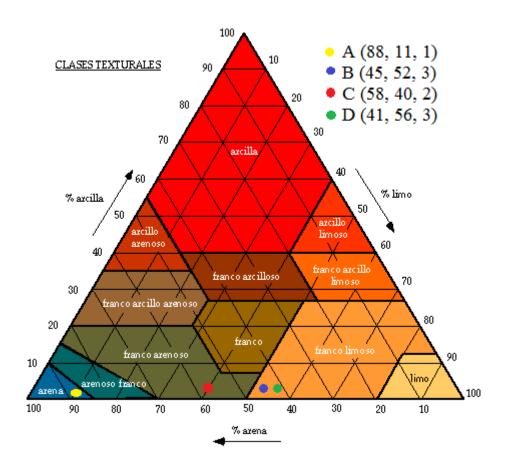


Figura 4. Textura de los suelos seleccionados. Clases texturales (USDA) (www.nrcs.usda.gov).

A continuación, se determinaron los parámetros físico-químicos de los suelos, de modo que se verificó que los suelos eran aptos para los distintos cultivos. Existen diversos parámetros que se deben tener en cuenta: 1) pH, clasifica los suelos en básicos o ácidos, y puede afectar en la disponibilidad de nutrientes y al crecimiento de los cultivos; 2) materia orgánica (m.o.), determinante para tener un suelo fértil y productivo; 3) conductividad eléctrica, indica la salinidad de los suelos; 4) densidad aparente, depende de la composición mineral del suelo y del grado de compactación; y 5) porosidad, ligada directamente con la aireación del suelo.

Los valores de todos los parámetros descritos anteriormente (tabla 5), se encuentran dentro de los rangos para que los suelos sean aptos para ser cultivados, debido a que el valor de pH tiene que encontrarse dentro del rango 5.1-8.5 y la conductividad eléctrica no sea superior a 6000 μ S/cm. Dos de nuestros suelos (B y D) tienen alta porosidad por tener un porcentaje entre 15-40 %, y los otros dos suelos (A y C) tienen una porosidad muy alta, ya que su porosidad se encuentra por encima del

40%. Con respecto a la densidad aparente de los suelos, todos ellos se consideran suelos minerales, ya que sus valores se encuentran dentro del rango 1 - 1.8 kg/L (Porta et al., 2003) (Rojas 2009).

Suelo	A	В	С	D
d (kg/L)	1.329	1.329	1.034	1.278
m.o. (%)	8.0	7.0	9.7	9.0
Porosidad (%)	47	37	49	37
pН	7.9	6.6	7.8	7.1
C (µS/cm)	97	91	3770	151

Tabla 5. Parámetros físico-químicos de los suelos utilizados en las diferentes experiencias.

A continuación, se determinaron las concentraciones de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po existentes en los distintos suelos (tabla 6). En dicha tabla se puede observar, que los suelos A, B y C, presentan actividades similares para todos los radionucleidos estudiados. En todos los suelos, el ²³⁴U y ²³⁸U se encuentran en equilibrio. Si evaluamos las concentraciones de ²²⁶Ra y ²³⁸U de cada suelo, en los suelos A, B y C las actividades de ²²⁶Ra son superiores que las de ²³⁸U, siendo éstas similares en el suelo D.

Radionucleido	Suelo (Bq/kg)			
	A	В	С	D
²³⁸ U	42 ± 5	33 ± 2	39 ± 5	195 ± 31
^{234}U	41 ± 5	30 ± 2	37 ± 5	201 ± 32
²²⁶ Ra	75 ± 3	51 ± 5	55 ± 4	205 ± 20
²¹⁰ Po	75 ± 12	45 ± 5	57 ± 8	161 ± 22

Tabla 6. Concentración de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en los diferentes suelos, expresada en Bq/kg.

Por otra parte, el suelo D, destaca porque presenta las mayores concentraciones de todos los radionucleidos, en un factor 2-5 veces dependiendo del radionucleido y del suelo considerado. Las altas concentraciones de radionucleidos en el suelo D, se puede atribuir a que el suelo fue recogido en una zona cuya litología es de naturaleza granítica, con unos niveles de radiación γ natural más altos que en el resto de los suelos (Suarez et al., 2000) (figura 5).

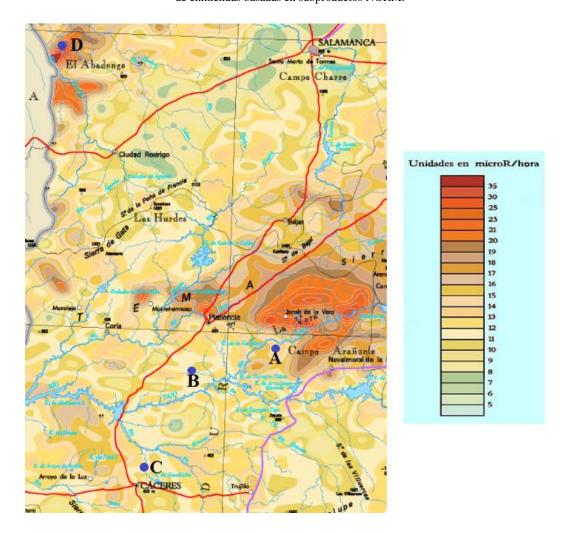


Figura 5. Imagen parcial del mapa de radiación gamma natural en España (MARNA) (Suarez et al., 2000), identificándose los suelos utilizados en este estudio.

A continuación, se valoran ciertos cationes, que se encuentran en la solución del suelo y que podrían ser importantes para poder evaluar la transferencia de los radionucleidos estudiados al trigo. Los macronutrientes que se analizaron son esenciales en el crecimiento de las plantas, constituyendo cada uno de ellos funciones primordiales. Como ejemplo de estas funciones, el K y Na se ocupan del mantenimiento de la turgencia, mientras que el Ca es un constituyente de la pared celular (función estructural) y el Mg forma parte de la clorofila, regulando el pH y promoviendo reacciones enzimáticas.

En la tabla 7, se encuentran las concentraciones de K, Na, Ca y Mg en los diferentes suelos. Como se puede observar, el suelo C es el que tiene las concentraciones más altas de K, Na y Ca, hecho relacionado directamente con la conductividad, puesto que, en suelos con altos niveles de conductividad eléctrica, existen altos contenidos

de cationes (Camacho-Tamayo 2013). El K, es el macronutriente con las concentraciones más altas en todos los suelos.

Elemento	Suelo (g/kg)			
estable	A	В	C	D
K	34 ± 4	13 ± 4	41.8 ± 0.6	20 ± 5
Na	6.2 ± 0.5	0.96 ± 0.33	12.9 ± 0.2	1.7 ± 0.4
Ca	1.82 ± 0.12	0.52 ± 0.05	9.80 ± 0.14	0.95 ± 0.14
Mg	1.30 ± 0.08	1.7 ± 0.5	3.24 ± 0.11	4.3 ± 1.0

Tabla 7. Concentración de K, Na, Ca y Mg en los diferentes suelos, expresada en g/kg.

Las altas concentraciones de K, podrían deberse a que los suelos tienen dominio silíceo (IGME 2014). Este elemento, se encuentra en los suelos en las estructuras de feldespatos y micas, minerales formados por diversos silicatos.

Para finalizar con este punto, se calcularon las cantidades de radionucleidos y elementos estables, capaz de aportar cada suelo y ser adsorbido por las plantas de trigo. A este término, se le denomina fracción intercambiable, y se refiere a esa porción de nutrientes que están adsorbidos a las arcillas y humus del suelo. Para ello, se utilizó un procedimiento de extracción secuencial basado en Tessier (Tessier et al., 1979), extrayendo la fracción intercambiable (F2) con NH₄OAc 1M. Para realizar la extracción de la F2, se adicionan 40 mL de NH₄OAc 1M a 4 g de suelo, agitando durante 10 minutos y dejando reposar un mínimo de 12 horas. Trascurrido este tiempo, se separa el sobrenadante del suelo mediante filtración, correspondiendo el sobrenadante a la fracción intercambiable.

En la figura 6, se muestra el porcentaje de fracción intercambiable de los radionucleidos naturales y elementos estables en los diferentes suelos. El Ca es el que tiene mayor porcentaje de fracción intercambiable, con una variación del 21 al 80%. El Mg es el siguiente con los porcentajes más altos, con un rango de 4.1 – 27.5%. Por otra parte, respecto a radionucleidos el porcentaje intercambiable más alto es el ²²⁶Ra cuyo rango es de 2.8 – 19.6%, seguido de ^{234,238}U con un rango de 0.25 – 4.1%, siendo el ²¹⁰Po el radionucleido con la fracción intercambiable más baja. El K y Na, resultaron ser los elementos menos disponibles.

Por tanto, el orden decreciente de la fracción intercambiable de radionucleidos naturales y elementos estables, sería:

$$Ca > Mg$$
, $^{226}Ra > ^{234,238}U > ^{210}Po$, K, Na

La baja disponibilidad del K en los suelos, se debe a que el porcentaje de K intercambiable y de K en solución, es menor del 2% del K total del suelo. Nuestros resultados para la fracción intercambiable son coherentes con los obtenidos por Hernández et al., 1988:

$$Al^{3+} > Ca^{2+} > Mg^{2+} > K^+ = NH_{4+} > Na^+$$

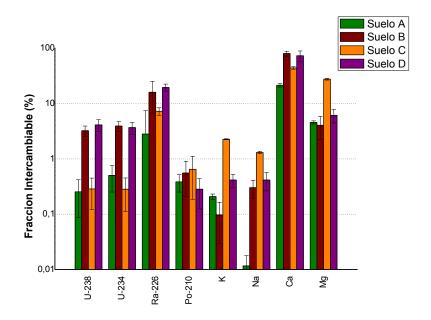


Figura 6. Fracción intercambiable de los radionucleidos naturales (^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po) y de los elementos estables (K, Na, Ca y Mg) de los diferentes suelos, expresada en %.

4.1.4. Caracterización de la enmienda

La enmienda seleccionada para modificar los diferentes suelos, es un fango generado en una potabilizadora.

Para este estudio, se utilizó el fango generado en una ETAP, en la cual se modificaron los procedimientos de rutina para poder eliminar el uranio y el radio del agua en tratamiento (Baeza et al., 2014), debido a que la dosis indicativa total se encontraba por encima del valor establecido por la Directiva Europea (EU 2013). La eliminación de estos radionucleidos del agua de consumo implica que se

acumulan en los fangos generados durante el proceso de coagulación-floculación de la potabilización.

Por este motivo, se analizaron las concentraciones de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po del fango utilizado para las diferentes experiencias (tabla 8). Como se puede observar, las actividades en el fango analizado son superiores a las de los suelos, aproximadamente en dos órdenes de magnitud. Estas concentraciones, las cuales difieren de ser exentas, superan los límites permitidos según la directiva vigente en los materiales considerados como NORM (EU 2002). Otro aspecto que puede afectar a los suelos que vayan a ser modificados con esta enmienda, es el desequilibrio que hay en el uranio, siendo el cociente ²³⁴U/²³⁸U de 5.6. La fracción intercambiable de los radionucleidos naturales en el fango, se calculó de forma teórica, obteniéndose un porcentaje similar para el ^{234,238}U y ²²⁶Ra (Baeza et al., 2014).

	Fango			
Radionucleido	Actividad	Fracción	Límites establecidos	
	(Bq/kg)	Intercambiable (%)	por EU (Bq/kg)	
²³⁸ U	1257 ± 122	35 ± 5	500	
²³⁴ U	7005 ± 662	37 ± 5	500	
²²⁶ Ra	6341 ± 690	35 ± 3	500	
²¹⁰ Po	779 ± 115	0.18 ± 0.11	500	

Tabla 8. Concentración (Bq/kg), fracción intercambiable (%) (Baeza et al., 2014) y niveles autorizados de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en el fango (EU 2002).

Suelos modificados con fango

Los suelos que se utilizaron para realizar estas experiencias, fueron tres suelos con clases de texturas distintas y contenido radioactivo similar, a fin de analizar la influencia de la textura del suelo en la transferencia. Es por ello, que se eligen los suelos A, B y C.

La cantidad de fango utilizada para enmendar los diferentes suelos, fue equivalente a lo que supondría añadir en un cultivo real unos 600 kg/ha (Finck 1988), cantidad que se utiliza comúnmente en la fertilización de suelos agrícolas, siendo aproximadamente el 3.6% de la masa total de cada suelo. La mezcla de suelo y

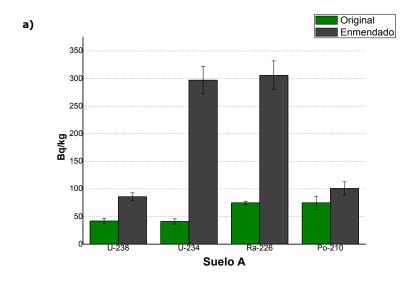
fango, se dejó para que alcanzase el equilibrio iónico entre los distintos componentes durante un período de 2 meses.

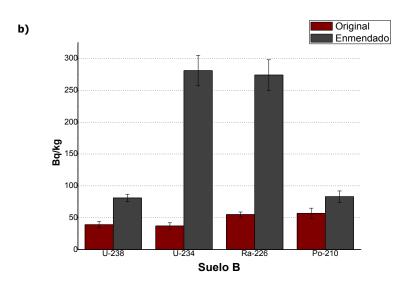
Cuando se adiciona una enmienda a un campo de cultivo, es lógico considerar que los parámetros físico-químicos del suelo pudieran ser modificados. Por esta razón, se analizó el pH y la conductividad de los suelos utilizados en las experiencias (tabla 9), una vez adicionado el subproducto NORM a éstos. La utilización de fango, modificó la conductividad eléctrica, aumentando su valor en todos los suelos enmendados, mientras que en el pH no se produjo un cambio significativo, siendo los valores de los suelos originales y enmendados similares.

Suelo	pН		C (µS/cm)	
	Original	Enmendado	Original	Enmendado
A	7.9	7.8	97	441
В	6.6	6.9	91	604
С	7.8	7.7	3770	4109

Tabla 9. Principales parámetros físico-químicos de los suelos originales y enmendados.

En la figura 7, se muestran las concentraciones de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po de los suelos originales y de los suelos modificados con fango. En los suelos originales, se puede observar que los radionucleidos se encuentran en equilibrio secular. Sin embargo, con la aplicación de la enmienda, las concentraciones de ²³⁸U, ²³⁴U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po aumentaron en todos los suelos, y en especial la concentración de ²³⁴U, aumentando la ratio ²³⁴U/²³⁸U para todos los suelos en el rango 3.4 – 4.2, ya que, estos radionucleidos se encuentran en desequilibrio en el fango incorporado.





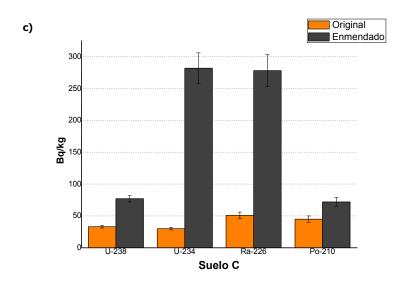


Figura 7. Concentración de 234,238 U, 226 Ra y 210 Po en los suelos originales y en los suelos modificados con fango, expresada en Bq/kg.

4.2. Concentración de radionucleidos naturales y elementos estables en el trigo, y el cálculo de factores de transferencia según el método de cultivo

En este apartado, se pretende analizar la influencia de cada método de cultivo (hidroponía, plántulas y condiciones de producción agrícola), con el objetivo de conocer la transferencia del suelo a la planta y la movilidad de los radionucleidos naturales en la misma, mediante las concentraciones en cada una de las fracciones del trigo. A continuación, se estudia la transferencia dependiendo del medio de cultivo a la planta, y de esa manera, comparar entre los diferentes cultivos realizados.

4.2.1. Hidroponía

Las concentraciones de radionucleidos obtenidas en el cultivo hidropónico, fueron diferentes dependiendo de la parte de la plántula analizada, tallo o raíz. En la figura 8, tenemos las concentraciones de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en el tallo (a) y en la raíz (b), y la ratio tallo/raíz (c) para las dos aguas utilizadas en las experiencias hidropónicas (agua A y agua B). Se observa que, las concentraciones de ^{234,238}U y ²¹⁰Po, en ambas fracciones, son superiores para la experiencia con el agua A. Sin embargo, las concentraciones de ²²⁶Ra, en la raíz y en el tallo, son mayores en la experiencia con agua B, pudiendo ser uno de los motivos el hecho de que las actividades de ²²⁶Ra en el agua B son muy superiores a las del agua A (ver tabla 3).

Las concentraciones de uranio en la raíz (figura 8b), fueron superiores en el agua A en un factor de 2.7 y 1.8 para el ²³⁸U y ²³⁴U, respectivamente, aun siendo las concentraciones de estos radionucleidos ligeramente superiores en el agua B (ver tabla 3). Este comportamiento, podría deberse a una concentración más baja de elementos esenciales en el agua A, ya que, suelen estar ligados a compuestos como bicarbonatos, sulfatos y cloruros, cuyas concentraciones son inferiores en dicha agua (ver tabla 1). Este hecho, se analiza en un estudio en el cual se demuestra que, una deficiencia de un elemento esencial, puede facilitar la absorción de un elemento no esencial por parte de la planta (Viehweger et al., 2010).

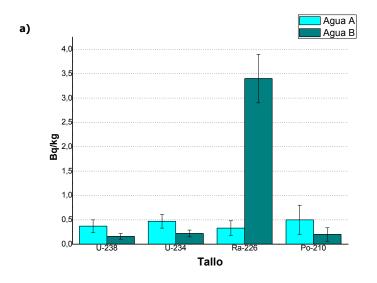
Las concentraciones de ²¹⁰Po en el tallo y en la raíz son similares (figura 8a,b), debido a que las concentraciones de ²¹⁰Po para las dos aguas son muy parecidas.

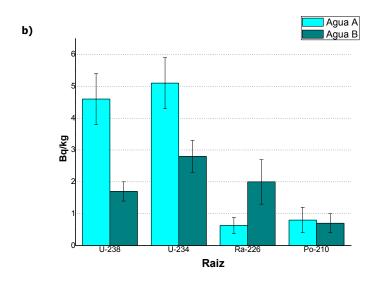
Para analizar la heterogeneidad que los radionucleidos naturales tienen dentro de la plántula, se calcula el cociente tallo/raíz (figura 8c). De modo que, si el cociente es mayor a 1, habrá una concentración mayor en el tallo, y si es menor a 1 la concentración será mayor en la raíz. Por ello, se puede observar que la concentración de radionucleidos, fue generalmente superior en la raíz, a excepción del ²²⁶Ra para el agua B, siendo su concentración mayor en el tallo. Este comportamiento, puede estar relacionado con compuestos de carbonatos y sulfatos de calcio, formados por elementos alcalinotérreos análogos al radio, esenciales para la función estructural de la plántula. Como se comentó en el apartado 4.1.1, estos compuestos son más abundantes en el agua B (ver tabla 1).

La ratio tallo/raíz para el ²²⁶Ra varía en un rango de 0.5 a 1.9, estando en concordancia con otro tipo de plantas, *Helianthus annuus* (girasol), en cultivo hidropónico, con un rango del cociente tallo/raíz de 0.38 – 1.35, que se puede calcular a partir de los datos que se reportan (Rodríguez et al., 2006).

El comportamiento del ^{234,238}U y el ²¹⁰Po, con unas concentraciones más altas en la raíz, coincide con otros estudios realizados en hidroponía (Lee et al., 2002) (Soudek et al., 2011), atribuyéndose a la baja movilidad del uranio en los tejidos vegetales (Soudek et al., 2014).

Por otra parte, la acumulación de uranio en la raíz también puede depender de la cantidad de uranio presente en la disolución. En las experiencias de hidroponía realizadas, la concentración de uranio en la disolución varía de 0.31 a 0.54 Bq/L (ver tabla 3), lo que implica un rango en la ratio tallo/raíz de 0.08 – 0.09. En un estudio, donde se utilizó *Helianthus annuus* en cultivo hidropónico, la actividad de uranio en el medio fue de 2.3 – 43 Bq/L, con una ratio tallo/raíz de 0.00013 – 0.0024 (Rodríguez et al., 2006), lo que indica que, a mayor concentración de uranio en la disolución, mayor será la concentración de uranio en la raíz. La ratio tallo/raíz para el uranio, coincide con el estudio realizado con *Arabidopsis halleri*, donde la ratio en sistemas hidropónicos fue de 1:15, calculada a partir de las medias de los 3 ciclos de crecimiento, cada uno con 3 repeticiones (Viehweger et al., 2010).





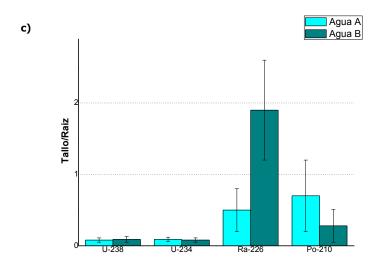


Figura 8. Concentración de 234,238 U, 226 Ra y 210 Po en el tallo (a) y en la raíz (b), expresada en Bq/kg, y la ratio tallo/raíz (c) utilizando el agua A y el agua B.

Para analizar la transferencia en las experiencias hidropónicas, se calcularon los factores de transferencia (TF) de los radionucleidos naturales mediante la siguiente ecuación (ec. 1):

$$TF (kg/L) = \frac{A_{tallo\ o\ raiz} (Bq/kg)}{A_{aqua} (Bq/L)} (1)$$

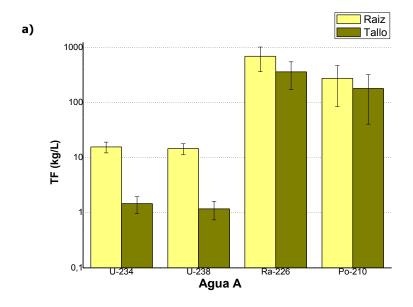
donde TF son los factores de transferencia expresados en kg/L, y $A_{tallo\ o\ raiz}$ la actividad de los radionucleidos naturales en el tallo o en la raíz, expresada en Bq/kg de masa seca, y A_{agua} la actividad en el agua, expresada en Bq/L.

En la figura 9, se encuentran los factores de transferencia del ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en el tallo y en la raíz, para el agua A (a) y el agua B (b). En ambas gráficas, se puede observar la diferencia de 1 – 2 órdenes de magnitud que existen en los factores de transferencia del ²²⁶Ra para el agua A y el ²¹⁰Po en las dos aguas, en comparación con los TF del uranio. Sin embargo, y debido a la definición de la ecuación 1, estos valores son elevados debido a la baja actividad de ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en las aguas. Otro aspecto que hay que destacar, es que la transferencia ocurre en mayor medida a la raíz, excepto para el ²²⁶Ra en el agua B.

Los factores de transferencia obtenidos en este trabajo para cultivos hidropónicos, pueden compararse con los obtenidos en un estudio realizado con *Helianthus annuus* (girasol), con unos rangos en los TF de 55 – 116 en los tallos y de 85 – 145 en las raíces para el ²²⁶Ra, mientras que para el uranio obtienen unos rangos en los TF de 0.12 – 0.75 en los tallos y un rango de 248 – 958 en las raíces (Rodríguez et al., 2006). En dicho estudio, los valores de TF para el uranio en las raíces, son significativamente superiores a los obtenidos en nuestras experiencias, hecho que puede atribuirse a dos causas:

• El girasol es una planta herbácea que se utiliza en la fitorremediación. Esta técnica, aprovecha la capacidad de ciertas plantas para absorber, acumular, metabolizar, volatilizar, o estabilizar contaminantes presentes en el suelo, aire, agua o sedimentos (Delgadillo-López et al., 2011). Por ello, se utilizan plantas hiperacumuladoras, como es el caso del girasol, donde se demostró que era capaz de eliminar hasta el 95% del uranio de una solución con 56 μg/L de uranio en 24 horas (Dushenkov et al., 1997).

• Por otra parte, cuando la concentración de P en el medio acuoso es prácticamente nula, el uranio es absorbido fácilmente por las raíces, mientras que en presencia de este elemento, se pueden forman complejos U-P y dificultar dicha absorción (Tailliez et al., 2013). Por ello, se analizan las concentraciones de P en la solución, resultando para ese estudio una concentración de 0.00062 g/L de P (Rodríguez et al., 2006), y en el presente trabajo de 0.81 g/L de P.



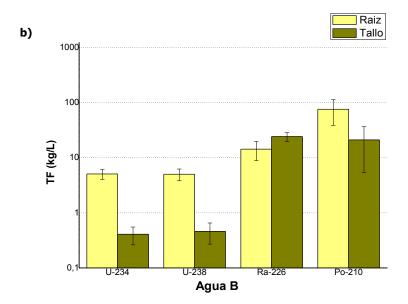


Figura 9. Factores de transferencia de 234,238 U, 226 Ra y 210 Po en el tallo y en la raíz, en el agua A (a) y en el agua B (b), expresados en kg/L.

4.2.2. Plántulas

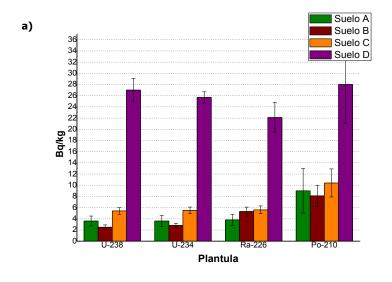
En la figura 10, tenemos las concentraciones de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po (a) y las concentraciones de K, Na, Ca y Mg (b) en la plántula (tallo+raíz), en los diferentes suelos. Dichas concentraciones se calcularon mediante la siguiente ecuación (ec. 2):

$$C_{plántula\ entera}\ (Bq/kg\ o\ g/kg) = \frac{C_{raíz}\cdot m_{raíz} + C_{tallo}\cdot m_{tallo}}{m_{raíz} + m_{tallo}}\ (2)$$

donde $C_{plántula}$ es la concentración en la plántula entera, $C_{raíz}$ es la concentración en la raíz y C_{tallo} es la concentración en el tallo, expresada en Bq/kg para los radionucleidos naturales y en g/kg para los elementos estables; $m_{raíz}$ es la masa de las raíces y m_{tallo} la masa en los tallos, expresada en g de masa seca.

Se puede observar, figura 10 a, que la concentración de ^{234,238}U y ²²⁶Ra en los suelos A, C y D son similares, mientras en el suelo B la concentración de ²²⁶Ra es superior a la de ^{234,238}U. Para el suelo D, se obtienen las mayores concentraciones de todos los radionucleidos en la plántula, ya que, es el suelo con las concentraciones de radionucleidos naturales más altas (ver tabla 6). La concentración de ²¹⁰Po en la plántula, es generalmente superior que la del ²²⁶Ra y ^{234,238}U.

Con respecto a los elementos mayoritarios, figura 10 b, el K es el nutriente que más abunda en la plántula, siendo el Na el elemento más escaso. Con respecto al Ca y Mg, las concentraciones de Ca en la plántula son más altas en los suelos A, B y C, siendo muy semejantes en el suelo D. Cabe destacar, la concentración de K en la plántula para el suelo C, lo cual es lógico, teniendo el mayor porcentaje de fracción intercambiable de todos los suelos (ver figura 6).



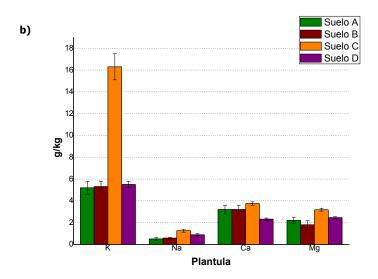


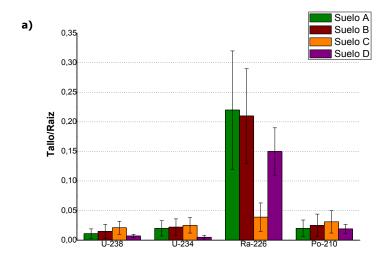
Figura 10. Concentración de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po (a), expresada en Bq/kg, y de elementos estables (b), expresada en g/kg, en la plántula, para los diferentes suelos.

Para conocer la distribución de los radionucleidos y elementos estables dentro de la plántula, se calculó el cociente tallo/raíz. Por ello, en la figura 11, tenemos la ratio tallo/raíz de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po (a), y la ratio tallo/raíz de K, Na Ca y Mg (b), en los diferentes suelos. En la figura 11 a, se puede observar que la distribución en la plántula fue heterogénea, ya que las concentraciones de todos los radionucleidos naturales fueron más altas en la raíz. El ²²⁶Ra, fue el radionucleido que menos se acumuló en la raíz con un rango en la ratio tallo/raíz de 0.039 – 0.22, mientras que el ^{234,238}U y el ²¹⁰Po varía en un rango de 0.005 – 0.031. La concentración preferente del uranio y el ²¹⁰Po en la raíz, podría estar relacionado, como ya se ha visto en hidroponía, con la baja movilidad de estos radionucleidos en los tejidos vegetales.

Otros autores, reportaron resultados similares en relación a la acumulación de ^{234,238}U en la raíz (Al-Hamarneh et al., 2016) (Alsabbagh et al., 2017).

Por otra parte, si analizamos el comportamiento de los elementos estables dentro de la plántula, figura 11 b, el resultado es similar que en los radionucleidos naturales, la distribución resulta ser heterogénea. El K y el Mg, con una ratio tallo/raíz >1, se acumula preferentemente en el tallo para todos los suelos, mientras el Na, con una ratio <1 para todos los suelos, se acumula preferentemente en la raíz. En el caso del Ca, en los suelos A y B la concentración es más alta en los tallos con una ratio de 1.3 y 2.0, respectivamente, y en los suelos C y D la concentración es más alta en la raíz con una ratio de 0.77 y 0.65, respectivamente.

La mayor acumulación del K en el tallo y del Na en la raíz, coincide con un estudio en el que se cultivaron plántulas de trigo, donde las ratios tallo/raíz para el K es de 3.07 y para el Na es de 0.47 (Guillén et al., 2017). Un comportamiento similar ocurre en otro estudio, donde relaciona el K y el Na en plántulas de trigo, donde la ratio K/Na en la hoja es 5.4 (Poustini et al., 2004).



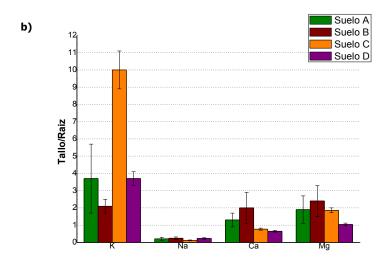


Figura 11. Ratio tallo/raíz de los radionucleidos naturales (a) y elementos estables (b) en los diferentes suelos.

La transferencia de los distintos radionucleidos (^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po) y elementos estables (K, Na, Ca y Mg) de los diferentes suelos a las plántulas de trigo, se cuantificó mediante los factores de transferencia, F_v (ec. 3):

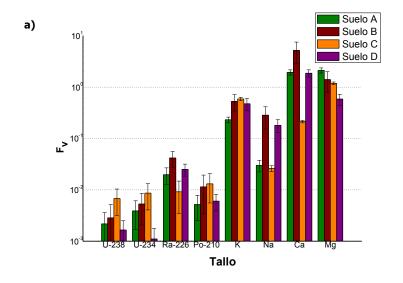
$$F_{v} = \frac{C_{pl\acute{a}ntula\ o\ tallo\ o\ ra\acute{a}z}\left(Bq/kg\ o\ g/kg\right)}{C_{suelo}\left(Bq/kg\ o\ g/kg\right)} \ (3)$$

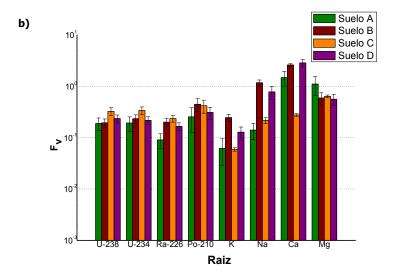
La figura 12 muestra los factores de transferencia de los radionucleidos naturales y elementos estables en el tallo (a), en la raíz (b) y en la plántula en su conjunto (c), en los diferentes suelos. Se puede observar, que los F_v de los radionucleidos naturales son superiores en la raíz, mientras que el comportamiento de los

elementos estables difiere entre ellos, de tal manera que, el K y el Mg se transfieren preferentemente en el tallo, el Na tiene valores de F_v más altos en la raíz, mientras que para el Ca, su transferencia es distinta dependiendo del tipo de suelo. De modo que, para los suelos A y B su transferencia es mayor en el tallo, y para los suelos C y D los valores de F_v son superiores en la raíz. Comparando los valores de F_v de radionucleidos naturales y elementos estables, mientras en el tallo existe disparidad de valores, en la raíz, los valores de $^{234,238}\text{U},\,^{226}\text{Ra},\,^{210}\text{Po}$ y K son similares, y los F_v de Na, Ca y Mg son más altos que los anteriores. Con respecto a los F_v en la plántula en su conjunto (figura 12 c), el Ca es el que resulta tener mayor transferencia entre elementos estables y radionucleidos naturales, siendo los valores de F_v más bajos los del $^{234,238}\text{U},\,^{210}\text{Po}$ y $^{226}\text{Ra}.$ Si analizamos los valores de F_v de forma global, los elementos estables, por lo general, tienen los factores de transferencia más altos, con un rango en el tallo de 0.03 - 5.2, en la raíz de 0.06 - 2.8, y en la plántula en su conjunto de 0.08 – 6.1, mientras que los radionucleidos naturales tienen un rango de F_v en el tallo de 0.0011 - 0.04, en la raíz de 0.09 - 0.45, y en la plántula en su conjunto de 0.023 - 0.18. Resultados que podrían atribuirse a que estos elementos son mayoritarios y esenciales para las plantas, y son usados en la formación de tejidos vegetales, mientras que en el caso de los radionucleidos, sus concentraciones en masa son mucho más bajas, siendo del orden de trazas.

Por todo lo anterior, la transferencia de radionucleidos naturales y elementos estables, se podría ordenar de la siguiente manera:

- Tallo: $Ca \ge Mg > K > Na > Ra > Po, U$
- Raíz: Ca > Mg, Na > K, U, Ra, Po
- Plántula: Ca > Mg > K, Na > U, Po, Ra





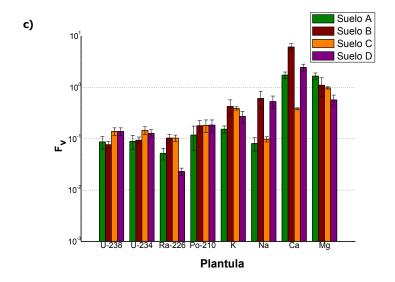


Figura 12. Factores de transferencia en el tallo (a), raíz (b) y plántula entera (c), de los radionucleidos naturales (234,238 U, 226 Ra y 210 Po) y los elementos estables (K, Na, Ca y Mg) en los diferentes suelos.

Por otra parte, los valores de F_v del uranio en el tallo y en la raíz, se correlacionaron con el K total e intercambiable en el suelo (r=0.55 y r=0.75 para el tallo, y r=0.56 y r=0.95 para la raíz), y con el Ca total en el suelo (r=0.82). Los valores de F_v del 226 Ra en el tallo, se correlacionaron negativamente con el K total e intercambiable en el suelo (r=-0.95 y r=-0.77) y con el Ca total (r=-0.79), pero positivamente con el Ca intercambiable (r=0.59). Los valores de F_v del Ca en el tallo, se correlacionaron negativamente con el Ca total (r=-0.73) y positivamente con el Ca intercambiable (r=0.59).

Para finalizar, se compararon los valores de F_v obtenidos en el presente estudio, con los valores recopilados en el documento de la IAEA TRS472 (IAEA 2010). Por ello, en la tabla 10 se encuentran los valores de F_v en el tallo para cereales en climas templados y los obtenidos en este trabajo. Los valores de uranio y radio obtenidos en nuestras experiencias, se encuentran dentro del rango reportado en TRS472, próximos a la zona superior del rango. En el caso del K y Ca, los valores utilizados para establecer el rango en el documento de la IAEA son muy escasos, 2 para el K y 6 para el Ca. Aun así, algunos de nuestros valores de K son del mismo orden de magnitud que los informados en TRS472, y algunos valores de Ca se encuentran en la zona baja de dicho rango. Para el Ca0 y Ca0 y Ca0 y Ca0 y Ca0 en el IAEA TRS472 (IAEA 2010).

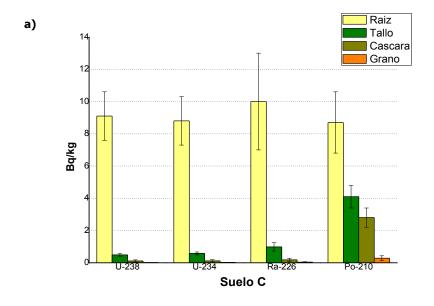
Radionucleido	Factor de transferencia en el tallo para			Este trabajo
Elemento estable	cereal inf			
	N Media Rango			Rango
U	55	2.7x10 ⁻²	$3x10^{-5} - 3.5$	0.076 - 0.14
Ra	20	3.6x10 ⁻²	$1.6 \times 10^{-3} - 0.43$	0.023 - 0.10
Po	_	_	_	0.12 - 0.18
K	2	1.1	0.93 - 1.2	0.15 - 0.43
Na	_	_	_	0.081 - 0.61
Ca	6	8.7	2.3 - 38	0.38 - 6.1
Mg	_	_	_	0.57 - 1.7

Tabla 10. Valor medio y rango de los factores de transferencia de U, Ra, Po, K, Na, Ca y Mg, reportado por la IAEA TRS472 (IAEA 2010), y el rango obtenido en este trabajo.

4.2.3. Condiciones de producción agrícola

En las experiencias que se realizaron para simular las condiciones de producción agrícola, se llegó hasta la fase final del cultivo, recogida de grano, pudiéndose analizar todas las fracciones que se obtienen durante el desarrollo del trigo (raíz,

tallo, cáscara y grano). De esta manera, se calcularon las concentraciones de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en la raíz, tallo, cáscara y grano, para los suelos C y D (figura 13 ab). Se puede observar, que para ambos suelos se aprecia una disminución de las concentraciones de todos los radionucleidos naturales en el siguiente orden: raíz > tallo > cáscara > grano. En el suelo D, por lo general, las concentraciones son más altas que en el suelo C, debido a las concentraciones iniciales en los suelos (ver tabla 6). Las concentraciones de ^{234,238}U en el grano, para ambos suelos, se encontraron por debajo del límite de detección. Las concentraciones de ²²⁶Ra en la raíz, tallo y grano del suelo C y D, son superiores a las concentraciones obtenidas en estudios como el de Lindahl et al., 2011, en donde se compararon cultivos tradicionales frente a cultivos orgánicos, pero que coinciden con la distribución de ²²⁶Ra en las diferentes partes de la planta: raíz > tallo > grano.



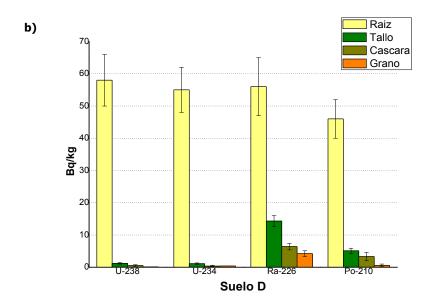


Figura 13. Concentración de 234,238 U, 226 Ra y 210 Po en la raíz, tallo, cascara y grano, en el suelo C (a) y en el suelo D (b), expresada en Bq/kg.

En la tabla 11, tenemos las ratios tallo/raíz, cáscara/tallo y grano/tallo de los radionucleidos naturales, en los distintos suelos. Podemos observar, por las ratios obtenidas, que la acumulación de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po son superiores en la raíz frente al tallo, y en el tallo existe una mayor concentración en comparación a la cáscara y al grano. Este comportamiento entre las diferentes fracciones del trigo, se repite en ambos suelos. Se podría destacar, la ratio cáscara/tallo para el ²²⁶Ra, siendo de un orden de magnitud mayor en el suelo D, lo que significa una mayor concentración en la cáscara para este suelo. Algo similar ocurre con la ratio

grano/tallo para el 226 Ra y el 210 Po, existiendo una diferencia de 1 – 2 órdenes de magnitud entre ambos suelos, debido a la mayor acumulación en el grano de estos radionucleidos en el suelo D. La distribución de 226 Ra en la planta, coincide con otros estudios similares (Lindahl et al., 2011) (Pulhani et al., 2005).

Radionucleido	Tallo/Raíz	Cáscara/Tallo	Grano/Tallo	
	Suelo C			
^{238}U	0.053 ± 0.012	0.22 ± 0.15	< 0.02	
^{234}U	0.067 ± 0.015	0.20 ± 0.13	< 0.03	
²²⁶ Ra	0.10 ± 0.04	0.020 ± 0.011	0.0044 ± 0.041	
²¹⁰ Po	0.57 ± 0.13	0.67 ± 0.20	0.069 ± 0.039	
Radionucleido	Suelo D			
^{238}U	0.020 ± 0.005	0.41 ± 0.27	< 0.11	
²³⁴ U	0.021 ± 0.005	0.32 ± 0.24	< 0.39	
²²⁶ Ra	0.26 ± 0.05	0.44 ± 0.09	0.29 ± 0.08	
²¹⁰ Po	0.111 ± 0.023	0.64 ± 0.28	0.11 ± 0.09	

Tabla 11. Ratio tallo/raíz, cáscara/tallo y grano/tallo, en los diferentes suelos.

En la figura 14, se encuentran calculados los factores de transferencia, F_v , de los radionucleidos naturales en la raíz (a), tallo (b), cáscara (c) y grano (d), en los diferentes suelos, mediante la ecuación (ec. 4):

$$F_{v} = \frac{C_{raiz\ o\ tallo\ o\ c\'ascara\ o\ grano}\ (Bq/kg)}{C_{suelo}\ (Bq/kg)}\ (4)$$

Se puede observar, que la mayor transferencia de radionucleidos naturales ocurre en las raíces, seguido en orden decreciente de: tallo, cáscara y grano. Mientras que, en la raíz, la transferencia es superior con el suelo D, en el tallo únicamente es superior para el ²²⁶Ra, ya que para el ^{234,238}U y el ²¹⁰Po, tiene una mayor transferencia con el suelo C. En la cáscara y el grano, por lo general, el comportamiento es similar que en el tallo, a falta del ^{234,238}U en el grano, al no conseguir actividad neta, pues se obtuvo límite de detección para estos isótopos.

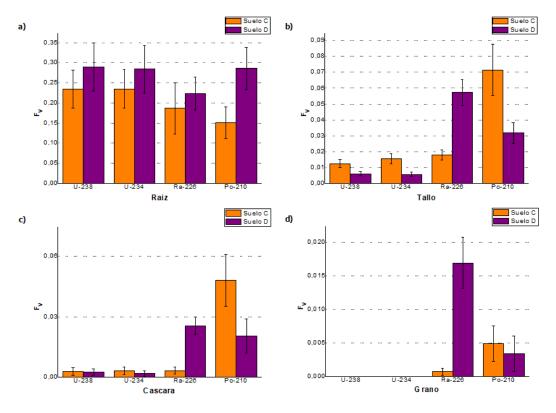


Figura 14. Factores de transferencia en la raíz (a), tallo (b), cáscara (c) y grano (d), de los radionucleidos naturales (^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po), en los suelos C y D.

Los resultados de factores de transferencia, se compararon con los valores informados en el documento de la IAEA TRS472 (IAEA 2010). Por ello, se han recopilado los valores de F_v del U, Ra y Po, para el tallo y el grano en cereales para climas templados, y los obtenidos en este trabajo (tabla 12). Se observa, que los valores de F_v para el uranio y el radio en el tallo obtenidos en este trabajo, se encuentran dentro del rango informado por TRS472. Para el polonio, no existen valores en el documento de la IAEA referente al tallo. Con respecto al grano, los valores de F_v obtenidos de radio se encuentran dentro del rango informado en el TRS472. Para el polonio, nuestros valores de F_v son de un orden de magnitud superior a los informados en este documento, rango que se obtuvo mediante dos valores (N=2), por lo cual, no se considera representativo. Por último, los valores de uranio obtenidos en el grano, se encuentran por debajo del límite de detección, siendo éstos inferiores que en el resto de las fracciones.

Parte de la planta	Rad.	Factor de transferencia para cereal informado en la IAEA TRS472			Este trabajo
		N	Media	Rango	Rango
	U	55	2.7x10 ⁻²	$3x10^{-5} - 3.5$	$5.7 \times 10^{-3} - 0.29$
Tallo	Ra	20	3.6x10 ⁻²	$1.6 \times 10^{-3} - 0.43$	0.018 - 0.22
	Po	_	_		0.032 - 0.29
Grano	U	59	6.2×10^{-3}	$1.6 \times 10^{-4} - 0.82$	$<2.2x10^{-3}$
	Ra	24	1.7x10 ⁻²	$8.0 \times 10^{-5} - 0.67$	$7x10^{-4} - 0.017$
	Po	2	2.4x10 ⁻⁴	$(2.2 - 2.6) \times 10^{-4}$	$(3.4 - 4.9) \times 10^{-3}$

Tabla 12. Valor medio y rango de los factores de transferencia de U, Ra y Po, reportado por la IAEA TRS472 (IAEA 2010), y el rango obtenido en este trabajo.

Los valores de F_v para ²³⁸U obtenidos en este trabajo, son de un orden de magnitud inferior a los reportados por Vandenhove et al., 2009, en los que el F_v para paja de cereal en ²³⁸U es de 0.25. Esta discrepancia en los resultados, puede estar ligada a la composición de los suelos, debido a que el uranio tiene una disponibilidad mayor en suelos con partículas gruesas (arena o arena fina) (Rodríguez et al., 2008), y la composición de los suelos utilizados en estas experiencias, tienen un porcentaje de limo del 40 y 56% para los suelos C y D, respectivamente. Con respecto al ²²⁶Ra, en un estudio realizado en dos regiones de la India, obtuvieron unos valores de F_v en grano de trigo que se situaban en un rango entre 0.009 – 0.016 (Pulhani et al., 2005), valores similares a los obtenidos en el presente trabajo. Los valores de F_v para ²¹⁰Po en el grano, fueron de un orden de magnitud inferior a los reportados en un estudio realizado alrededor de una mina de carbón al sur de Brasil, cuyo rango de F_v fue de 0.097 – 0.124 (Galhardi et al., 2017). Pero si consideramos la plántula entera, los valores de F_v obtenidos en este trabajo para ²¹⁰Po, varían de 0.035 – 0.063, coincidiendo con un estudio realizado en el Estado de Minas Gerais (Brasil), donde se analizó la transferencia suelo-planta en un cultivo de maíz, cuyo rango de F_v para ²¹⁰Po fue de 0.028 – 0.1 (Mazzilli et al., 2012).

4.2.4. Análisis comparativo de la transferencia entre los diferentes métodos de cultivo

Para poder comparar los diferentes cultivos (hidroponía, plántulas y condiciones de producción agrícola), hay que tener en cuenta dos factores:

- Interacción entre planta-radionucleido (medio de cultivo): como se describe en puntos anteriores, se han utilizado diferentes sustratos para realizar este trabajo. El cultivo hidropónico, se ha llevado a cabo utilizando una disolución de agua y fertilizante orgánico, mientras que en las plántulas y en condiciones de producción agrícola se han empleado diferentes suelos.
- Tiempo de interacción entre planta-radionucleido (duración de las experiencias): en hidroponía y en las plántulas, el trigo llegó hasta la fase de dos hojas, empleando para ello un tiempo aproximado de veintiún días.
 Con el cultivo en condiciones de producción agrícola, se alcanzó la fase de llenado de grano, con una duración de cultivo de seis meses.

Si comparamos las concentraciones de los radionucleidos naturales en las distintas partes del trigo, para los diferentes métodos de cultivos, por lo general, son similares en el tallo, excepto en la experiencia de condiciones de producción agrícola para el suelo D, siendo ligeramente superiores que el resto, ya que las concentraciones de radionucleidos en el suelo son más altas.

La mayor concentración de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en la raíz, se obtuvo en el cultivo simulando condiciones reales, atribuyéndose al tiempo, de seis meses, que las plantas de trigo están absorbiendo los nutrientes y elementos del suelo, mientras que en el resto de experiencias únicamente están veintiún días, y solamente se alcanza la fase de dos hojas. Al igual que en el tallo, el suelo D del cultivo en condiciones de producción agrícola, es el que tiene las concentraciones más altas de radionucleidos naturales. El cultivo hidropónico, fue la experiencia con las concentraciones más bajas en la raíz, aun siendo el cultivo donde se supone que los radionucleidos se encuentran disponibles para las plántulas al 100%, ya que sus raíces están en contacto directo con la disolución, pero es el medio de cultivo con la menor concentración de los tres estudiados. Por tanto, se podría ordenar según la concentración de radionucleidos, qué cultivo tiene mayor concentración en el tallo y en la raíz:

- Tallo: Condiciones de producción agrícola ≈ plántulas ≈ hidroponía
- Raíz: Condiciones de producción agrícola > plántulas > hidroponía

Si analizamos la distribución dentro de la plántula, el cociente tallo/raíz es <1 para todas las experiencias, excepto para el ²²⁶Ra con el agua B en el cultivo hidropónico, lo que indica que, generalmente el ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po se concentran en la raíz. Analizando la ratio tallo/raíz de los radionúclidos por separado, el ²²⁶Ra tiene un comportamiento distinto que el uranio y el polonio, de modo que:

- 234,238 U y 210 Po: hidroponía \approx condiciones de producción agrícola > plántulas
- 226 Ra: hidroponía > plántulas \approx condiciones de producción agrícola

Los valores de TF del cultivo hidropónico, no se pueden comparar directamente con los resultados de F_v en la experiencia en condiciones de producción agrícola y plántulas, ya que, en el cultivo hidropónico se estudia la transferencia disolución – trigo y en las otras experiencias, la transferencia es suelo – trigo. Sin embargo, con los valores de TF y F_v obtenidos en los tres cultivos, se puede concretar que la transferencia es mayor en la raíz que en el tallo, exceptuando los parámetros de TF para el 226 Ra del agua B en hidroponía, siendo más altos en el tallo.

Analizando los parámetros de TF y F_v de los radionucleidos naturales, dependiendo de la parte de la planta y del tipo de cultivo, obtenemos: a) hidroponía, el 226 Ra y el 210 Po son los radionucleidos con los valores de TF más altos en el tallo y en la raíz; b) plántulas, el radionucleido que más se transfiere en el tallo es el 226 Ra, mientras en la raíz, los valores de F_v de 234,238 U, 226 Ra y 210 Po, son similares; y c) condiciones de producción agrícola, dependiendo del suelo utilizado el comportamiento es diferente en el tallo, ya que, en el suelo C el 210 Po es el que tiene los valores de F_v más altos, siendo los del 234,238 U y 226 Ra similares. En el suelo D, los valores de F_v más altos son para 226 Ra y 210 Po. En la raíz, los parámetros de F_v son similares para todos los radionucleidos.

Si tenemos en cuenta únicamente los cultivos realizados con suelos, plántulas y condiciones de producción agrícola, los parámetros de F_v en el tallo, resultaron superiores en el cultivo de condiciones de producción agrícola, lo que podría deberse a la duración del cultivo, y especialmente para el 210 Po y el 226 Ra, siendo éste último análogo al Ca, elemento fundamental para el desarrollo estructural de

las plantas. Con respecto a las raíces, los valores de F_v en las plántulas fueron ligeramente superiores que en condiciones de producción agrícola, hecho que se podría justificar a que las raíces en las plántulas, permanecieron en una cantidad de suelo muy limitada, 50 g, y por lo tanto de nutrientes, mientras en el cultivo de condiciones de producción agrícola, se encontraban en varios kilos de suelo. Es por ello que, en las experiencias con plántulas se subestima la transferencia del suelo al tallo en un factor 1.8 - 5.2 para uranio, 2 - 2.3 para 226 Ra y 5.3 - 5.4 para 210 Po.

Con los resultados obtenidos de factores de transferencia en el tallo para hidroponía y plántulas, se pude subestimar en un factor 5 en comparación a la experiencia de condiciones de producción agrícola, debido a la duración de cada cultivo.

4.3. Influencia del subproducto NORM en la transferencia suelo-planta

Para analizar la posible contribución que el fango puede tener en las plántulas, al ser utilizado como enmienda en los suelos, se calculó la concentración de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en el tallo, raíz y plántula (tallo+raíz) de los diferentes suelos originales (A, B y C) y suelos enmendados (A*, B* y C*) (figura 15 a, b y c). Para calcular la concentración de radionucleidos naturales en la plántula (tallo+raíz), se utilizó la ec. 2.

En la figura 15a se puede observar, que la adición de fango no modifica la concentración de ^{234,238}U y ²¹⁰Po en el tallo, mientras para el ²²⁶Ra existe un aumento de la concentración en el tallo utilizando los suelos A*, B* y C*, en un factor 6.5, 4.4 y 11.2, respectivamente. En la raíz, figura 15b, se produce un aumento en la concentración de todos los radionucleidos en los suelos enmendados frente a los suelos originales. Los radionucleidos que más aumentan sus concentraciones en la raíz, al modificar los suelos, son el ²³⁴U y el ²²⁶Ra, ya que son los isótopos con las actividades más altas en el fango (ver tabla 8). Si consideramos la plántula entera (tallo+raíz), figura 15c, los niveles de actividad de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po son similares en las experiencias donde no se ha adicionado fango, sin embargo, se produce un aumento en las concentraciones de todos ellos en los suelos enmendados, en un factor que varía de 8.7 – 30.4 para ²³⁴U, 2.6 – 8 para ²³⁸U, 10.4 – 22 para ²²⁶Ra y 2.3 – 3.8 para ²¹⁰Po. Por otra parte, como se puede ver en la figura 15c, cuando se adiciona fango a los suelos, se produce un desequilibrio entre ²³⁴U

y ²³⁸U, siendo el cociente ²³⁴U/²³⁸U de 3.8, 4.3 y 3.4, para los suelos A*, B* y C*, respectivamente, debido al desequilibrio producido cuando se adiciona fango a los suelos (ver figura 7).

Debe destacarse que, tanto en los suelos originales como en los enmendados, existe una falta de homogeneidad dentro de la plántula, ya que la concentración de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po se localiza preferentemente en la raíz frente al tallo (figura 15 ab), comportamiento que se ha visto anteriormente en el cultivo hidropónico (4.2.1) y en condiciones de producción agrícola (4.2.3). En particular, calculando el cociente tallo/raíz, el rango para suelos originales varía entre 0.011 – 0.22, y para suelos enmendados entre 0.009 – 0.061, que demuestra la falta de homogeneidad en las dos fracciones de la plántula y que los suelos enmendados aumentan la concentración en la raíz.

Por otra parte, si analizamos la influencia que el lodo puede tener respecto a la movilidad de cada radionucleido dentro de la plántula, el cociente tallo/raíz para el ^{234,238}U en los suelos originales, varía en un rango de 0.011 – 0.025, mientras en los suelos enmendados el cociente varía entre 0.0012 – 0.009, lo que nos indica que el aporte de ^{234,238}U del lodo a la plántula, permanece mayoritariamente en la raíz. Con respecto al ²²⁶Ra, la diferencia más significativa, se corresponde para los suelos A y B, ya que el cociente tallo/raíz para los suelos A* y B*, es de un orden de magnitud inferior que en los suelos originales, suelos con las conductividades más bajas (ver tabla 9), siendo dicho cociente similar para el ²²⁶Ra en los suelos C y C*.

Por último, el cociente tallo/raíz del ²¹⁰Po, fue equivalente en los suelos B y C, mientras que en el suelo A se obtuvo un cociente de 0.02±0.014 y para el suelo A* de 0.006±0.004, mostrando una acumulación mayor de ²¹⁰Po en la raíz con la adición de fango.

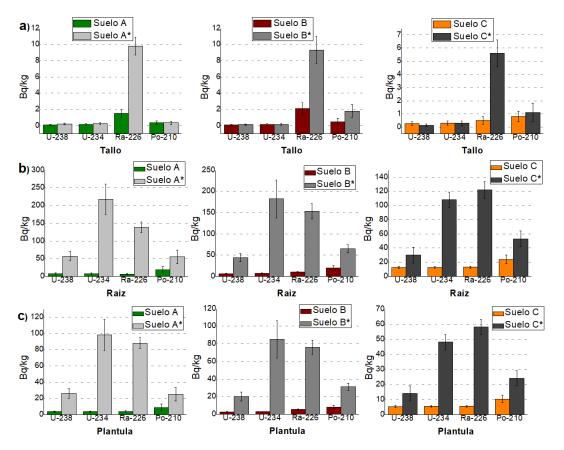


Figura 15. Concentración de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po en el tallo a), raíz b) y plántula c), en los suelos originales (A, B y C) y en los suelos enmendados (A*, B* y C*), expresada en Bq/kg.

Para analizar la transferencia de radionucleidos naturales de los diferentes suelos a las plántulas de trigo, se calculan los factores de transferencia de ^{234,238}U, ²²⁶Ra y ²¹⁰Po, en el tallo, raíz y plántula en su conjunto (ec. 3), para los suelos originales (A, B, y C) y suelos enmendados (A*, B* y C*) (figura 16 a, b y c). Los valores de F_v del ^{234,238}U en el tallo (figura 16a), son ligeramente más bajos en los suelos enmendados. La transferencia de ²¹⁰Po, fue similar en los suelos A y A*, C y C*, mientras en el suelo B* la transferencia fue superior que en el suelo original. Con respecto al ²²⁶Ra en el tallo, existe un aumento en los valores de F_v para los suelos A y C enmendados, mientras en el suelo B, los valores de F_v son mayores en el suelo original.

En la figura 16b, se puede observar que los valores de F_v de 234,238 U, 226 Ra y 210 Po en la raíz, aumentan para los suelos A y B enmendados (suelos con baja conductividad), mientras en el suelo C y C* los valores de F_v son similares. Comparando los valores de F_v del tallo y raíz, se puede apreciar que, la transferencia es mayor en la raíz que en el tallo, teniendo unos valores de F_v de un orden de

magnitud mayor en la raíz. Este comportamiento coincide, con los resultados obtenidos en los cultivos hidropónicos (4.2.1) y en condiciones de producción agrícola (4.2.3).

Si analizamos los valores de F_v en la plántula entera (figura 16c), se puede observar que la transferencia para el 226 Ra y el 210 Po en los suelos A^* , B^* y C^* aumentan frente a los suelos originales en un factor 5.6, 2.7 y 2.0 para el 226 Ra, y en un factor de 2.1, 2.4 y 1.6 para el 210 Po, respectivamente. En relación al 234,238 U, los valores de F_v aumentan en un factor de 3.5 – 3.7 para el suelo A^* y en un factor 3.2 – 3.5 para el suelo B^* , en comparación a sus suelos originales. En los suelos C y C^* , los valores de F_v de 234,238 U resultaron equivalentes.

Por otra parte, se analizaron los valores de F_v de los radionucleidos naturales de la plántula en su conjunto, con las conductividades de los suelos originales y enmendados. El resultado más significativo se dio para el ²³⁸U y el ²²⁶Ra en los suelos enmendados, ya que, a medida que la conductividad aumenta con la adición de fango (ver tabla 9), disminuye la transferencia de estos radionucleidos en la plántula. La fuerte relación entre la conductividad eléctrica (CE) y la materia orgánica (MO), es debido a que la MO juega un papel fundamental en el mantenimiento de las propiedades físicas del suelo y, que la MO está asociada a una acumulación de nutrientes y retención de agua, factores que tienen relación directa con la CE (Martínez et al. 2009). Por tanto, cuanto más elevada sea la conductividad eléctrica, mayor será el contenido de materia orgánica y de nutrientes, resultando en una absorción mayoritaria de estos elementos fundamentales para el crecimiento de las plantas, y por ello, dificultando la absorción de elementos innecesarios para su desarrollo estructural.

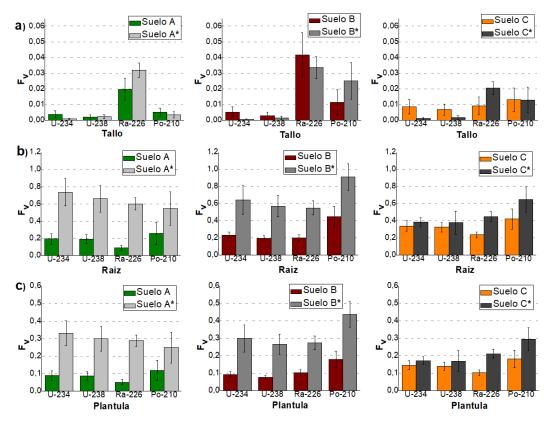


Figura 16. Factores de transferencia de 234,238 U, 226 Ra y 210 Po en el tallo a), raíz b) y plántula c), en los suelos originales (A, B y C) y en los suelos enmendados (A*, B* y C*).

Análisis de la transferencia de radionucleidos naturales desde diversos suelos tipo al trigo. Influencia del uso de enmiendas basadas en subproductos NORM.

5.- Conclusiones

Análisis de la transferencia de radionucleidos naturales desde diversos suelos tipo al trigo. Influencia del uso de enmiendas basadas en subproductos NORM.

5. Conclusiones

El objetivo principal de esta tesis es el de analizar la influencia que un subproducto NORM, utilizado como enmienda, puede tener en la transferencia de radionucleidos naturales a plántulas de trigo. Para llevar a cabo dicho objetivo, se han analizado las concentraciones de los radionucleidos naturales en las distintas fracciones de la plántula, para los diferentes métodos de cultivo, analizando la transferencia de los medios de cultivo al trigo. De esta forma, podemos llegar a afirmar que:

- 1.- Para los resultados de las experiencias realizadas en el laboratorio con los diferentes métodos de cultivo:
 - En todos los métodos de cultivo, el uranio, el ²²⁶Ra y el ²¹⁰Po se acumulan preferentemente en la raíz, suponiendo una baja movilidad dentro de los tejidos vegetales. Sin embargo, en el cultivo hidropónico con el agua B, la ratio tallo/raíz para el ²²⁶Ra es superior a 1. Este hecho, podría deberse a que el radio es químicamente análogo al Ca.
 - Las concentraciones de radionucleidos naturales en los tallos, es similar para todos los métodos de cultivo.
 - El TF de ²²⁶Ra fue más alto que el TF de uranio en el cultivo hidropónico.
 - En la experiencia con plántulas, el Ca es el que tiene los F_v más altos de los elementos estables y radionucleidos naturales.
 - Los F_v del uranio en las plántulas, se correlacionan positivamente con el K total e intercambiable, y con el Ca total de los suelos.
 - Los F_v de Ca y 226 Ra en las plántulas, se correlacionan negativamente con el Ca total, pero positivamente con el Ca intercambiable de los suelos.
 - Los factores de transferencia en el tallo en hidroponía y en las plántulas, se subestimaron hasta un factor 5 en comparación con la experiencia de condiciones de producción agrícola. Estos resultados, pueden estar relacionado con la temporalidad de los cultivos y por la cantidad limitada de suelo.
- 2.- Para los resultados del análisis de la influencia de un subproducto NORM, utilizado como enmienda, en la transferencia suelo-trigo:

- El uso de un subproducto NORM, puede incrementar significativamente la concentración de radionucleidos naturales en el suelo, incluso si la cantidad utilizada es baja (3.6% de la masa total de suelo).
- En los suelos modificados, la concentración de radionucleidos naturales aumenta en toda la plántula debido a la adición de la enmienda. Este aumento varía en el siguiente orden: ²²⁶Ra > ^{234,238}U > ²¹⁰Po.
- Los radionucleidos se acumulan preferentemente en la raíz, por lo que la distribución dentro de la plántula es heterogénea: raíz > tallo. Con este comportamiento, se podría desaconsejar el uso de fango como enmienda en tubérculos, aunque sería necesario realizar más ensayos.
- Los F_v de los radionucleidos naturales aumentan en la raíz para todos los suelos enmendados, siendo superior en los suelos con baja conductividad. Este comportamiento, podría deberse a que los radionucleidos se encuentran más disponibles en los suelos con fango.

6.- Referencias

Análisis de la transferencia de radionucleidos naturales desde diversos suelos tipo al trigo. Influencia del uso de enmiendas basadas en subproductos NORM.

6. Referencias

- (Al-Hamarneh et al., 2016) Al-Hamarneh, I.F., Alkhomashi, N., & Almasoud, F.I. (2016). Study on the radioactivity in irrigated farms from the northwestern Saudi Arabia. *Journal of environmental radioactivity*, 160, 1-7.
- (Alsabbagh et al., 2017) Alsabbagh, A. H., & Abuqudaira, T. M. (2017). Phytoremediation of Jordanian uranium-rich soil using Sunflower. *Water, Air, & Soil Pollution*, 228(6), 219.
- (Ayers et al., 1985) Ayers, R. S., & Westcot, D. W. (1985). Water quality for agriculture (Vol. 29, p. 174). Rome: Food and Agriculture Organization of the United Nations.
- (Baeza et al., 2014) Baeza, A., Salas, A., Guillén, J., & Muñoz-Serrano, A. (2014). Association of naturally occurring radionuclides in sludges from Drinking Water Treatment Plants previously optimized for their removal. *Chemosphere*, 97, 108-114.
- (Breban 2001) Breban, D. (2001). A laboratory approach for investigations into the potential effectiveness of potassium-based fertilisers in reducing radiocesium transfer from soil to plant. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 249(3), 633-637.
- (Bunzl et al., 1999) Bunzl, K., & Trautmannsheimer, M. (1999). Transfer of 238U, 226Ra and 210Pb from slag-contaminated soils to vegetables under field conditions. *Science of the total environment*, 231(2-3), 91-99.
- (Camacho-Tamayo 2013) Camacho-Tamayo, J. H. (2013). Relación espacial entre la conductividad eléctrica y algunas propiedades químicas del suelo. Revista UDCA Actualidad & Divulgación Científica, 16(2), 401-408.
- (Delgadillo-López et al., 2011) Delgadillo-López, A.E., González-Ramírez, C.A., Prieto-García, F., Villagómez-Ibarra, J.R., & Acevedo-Sandoval, O. (2011). Phytoremediation: an alternative to eliminate pollution. *Tropical and Subtropical Agroecosystems*. 14, 597-612.
- (Dushenkov et al., 1997) Dushenkov, S., Vasudev, D., Kapulnik, Y., Gleba,
 D., Fleisher, D., Ting, K. C., & Ensley, B. (1997). Removal of uranium from water using terrestrial plants. *Environmental Science & Technology*, 31(12), 3468-3474.

- **(EU 2002)** EU, 2002. European commission, Radiation protection 122. Practical use of the concepts of clearance and exemption. Part II: application of the concepts of exemption and clearance to natural radiation sources.
- (EU 2013) EU, European Directive 2013/51/ EURATOM, Related With Requirements for the Protection of the Health of the General Public With Regard to Radioactive Substances in Water Intended for Human Consumption, Brussels, Belgium, 2013, pp. 12–21 L296.
- (**FAO 2019**) FAO (2019). Cosecha mundial de cereales 2018/2019.
- **(FAO 2021)** FAO (2021). Nota informativa de la FAO sobre la oferta y la demanda de cereales. Fecha de publicación: 08/04/2021.
- (Fernández Gómez et al., 1999) Fernández Gómez, R., Yruela Morillo, M.C., Milla Milla, M., García Bernal, J.P., Avila Alabarces, R., Gavilán Zafra, P., & Oyonarte Gutierrez, N.A. (1999). Manual de Riego para Agricultores. Fundamentos del Riego (módulo 1). Edita Consejería de Agricultura y Pesca, Junta de Andalucía. Sevilla.
- (Finck 1988) Finck, A. (1988). Fertilizantes y fertilización. Reverté.
- (ICRP 2012) ICRP (2012). Compendium of Dose Coefficients base don ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. Ann. ICRP 41 (Suppl.)
- (Galhardi et al., 2017) Galhardi, J. A., García-Tenorio, R., Bonotto, D. M., Francés, I. D., & Motta, J. G. (2017). Natural radionuclides in plants, soils and sediments affected by U-rich coal mining activities in Brazil. *Journal of environmental radioactivity*, 177, 37-47.
- Guillén et al., 2014) Guillén, J., Baeza, A., Salas, A., Muñoz, J. G., & Muñoz, A. (2014). Radiological impact of fertilizers: production and use. Fertilizers: components, uses in agriculture and environmental impacts. Nova Science Publishers Inc, New York.
- (Guillén et al., 2017) Guillén, J., Muñoz-Muñoz, G., Baeza, A., Salas, A., & Mocanu, N. (2017). Modification of the 137 Cs, 90 Sr, and 60 Co transfer to wheat plantlets by NH 4+ fertilizers. *Environmental Science and Pollution Research*, 24(8), 7383-7391.
- (Hernández et al., 1988) Hernández, J., Casanova, O. N., & Zamalvide, J.
 P. (1988). Capacidad de suministro de potasio en suelos del Uruguay.
 Facultad de Agronomía.

- (IAEA 1994) International Atomic Energy Agency. (1994). 50-SG-012.
 Periodic Safety Review of Operational Nuclear Power Plants. International Atomic Energy Agency
- (IAEA 2004) International Atomic Energy Agency. (2004). Extent of environmental contamination by naturally occurring radioactive material (NORM) and technological options for mitigation. International Atomic Energy Agency.
- (IAEA 2010) International Atomic Energy Agency. (2010). Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environment. International Atomic Energy Agency.
- (**IGME 2014**) Instituto Geológico y Minero de España y Atlas Digital Escolar (2014). Mapa litológico de España.
- (Ivanovich 1982) Ivanovich, M. (Ed.). (1982). Uranium series disequilibrium: applications to environmental problems. Clarendon Press.
- (Laul 1992) Laul, J. (1992). Natural radionuclides in groundwaters. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 156(2), 235-242.
- (Lee et al., 2002) Lee, J. H., Hossner, L. R., Attrep Jr, M., & Kung, K. S. (2002). Uptake and translocation of plutonium in two plant species using hydroponics. *Environmental Pollution*, 117(1), 61-68.
- (Lindahl et al., 2011) Lindahl, P., Maquet, A., Hult, M., Gasparro, J., Marissens, G., & De Orduna, R. G. (2011). Natural radioactivity in winter wheat from organic and conventional agricultural systems. *Journal of environmental radioactivity*, 102(2), 163-169.
- (Martínez et al. 2009) Martínez, G., Vanderlinden, K., Giráldez, J. V., Espejo, A. J., Rodríguez, E., Ordóñez, R., & Muriel, J. L. (2009). Use of apparent electrical conductivity as secondary information for soil organic carbon spatial characterization. *Estudios en la Zona no Saturada del Suelo*, 9, 1-8.
- (Mazzilli et al., 2012) Mazzilli, B. P., Saueia, C. H., Jacomino, V. M., & Mello, J. W. (2012). Natural radionuclides and metals intake into soya, corn and lettuce grown on soil amended with phosphogypsum. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 92(14), 1574-1586.
- (Million et al., 1994) Million, J. B., Sartain, J. B., Gonzalez, R. X., & Carrier III, W. D. (1994). Radium-226 and Calcium Uptake by Crops

- Grown in Mixtures of Sand and Clay Tailings from Phosphate Mining. *Journal of environmental quality*, 23(4), 671-676.
- (Nakayama 1982) Nakayama, F. S. (1982). Water analysis and treatment techniques to control emitter plugging. In *Technical conference proceedings-Irrigation Association*.
- (Neubauer 1923) Neubauer H. (1923). Verband landwirtschaftlicher Versuchs-Stationen im Deutschen Reiche (Landw. Versuchsstat), 100-119.
- (Pastor 2005) Pastor, M. (2005). Cultivo del olivo con riego localizado: diseño y manejo del cultivo y las instalaciones, programación de riegos y fertirrigación (in Spanish)[Internet].
- (**Peña 2002**) Peña, R. J. (2002). Wheat for bread and other foods. *Bread wheat improvement and production. Food and Agriculture Organization of the United Nations. Rome*, 483-542.
- (Porta et al., 2003) Porta J, López-Acevedo M, & Roqueo C. (2003).
 Edafología para agricultura y el medio ambiente. *Mundi-Prensa. Madrid, España*.
- (**Poustini et al., 2004**) Poustini, K., & Siosemardeh, A. (2004). Ion distribution in wheat cultivars in response to salinity stress. *Field crops research*, 85(2-3), 125-133.
- (Pulhani et al., 2005) Pulhani, V. A., Dafauti, S., Hegde, A. G., Sharma, R. M., & Mishra, U. C. (2005). Uptake and distribution of natural radioactivity in wheat plants from soil. *Journal of environmental radioactivity*, 79(3), 331-346.
- (Rodríguez et al., 2006) Rodríguez, P. B., Tome, F. V., Fernandez, M. P., & Lozano, J. C. (2006). Linearity assumption in soil-to-plant transfer factors of natural uranium and radium in Helianthus annuus L. Science of the total environment, 361(1-3), 1-7.
- (Rodríguez et al., 2008) Rodríguez, P. B., Tomé, F. V., Lozano, J. C., & Perez-Fernandez, M. A. (2008). Influence of soil texture on the distribution and availability of 238U, 230Th, and 226Ra in soils. Journal of environmental radioactivity, 99(8), 1247-1254.
- (Rojas 2009) Rojas, V. (2009). Guía para la descripción de suelos (No. S591 G943). Organización de las Naciones Unidas para la Agricultura y la Alimentación.

- (**Sheppard 1980**) Sheppard, M. I. (1980). *The environmental behaviour of radium* (No. AECL--6796). Atomic Energy of Canada Ltd..
- **(Sheppard et al., 1988)** Sheppard, S. C., & Evenden, W. G. (1988). Critical compilation and review of plant/soil concentration ratios for uranium, thorium and lead. *Journal of Environmental Radioactivity*, 8(3), 255-285.
- (Soudek et al., 2011) Soudek, P., Petrová, Š., Benešová, D., Dvořáková, M., & Vaněk, T. (2011). Uranium uptake by hydroponically cultivated crop plants. *Journal of environmental radioactivity*, 102(6), 598-604.
- (Soudek et al., 2011) Soudek, P., Petrová, Š., & Vaněk, T. (2011). Heavy metal uptake and stress responses of hydroponically cultivated garlic (Allium sativum L.). Environmental and experimental botany, 74, 289-295.
- (Soudek et al., 2014) Soudek, P., Petrová, Š., Buzek, M., Lhotský, O., & Vaněk, T. (2014). Uranium uptake in Nicotiana sp. under hydroponic conditions. *Journal of Geochemical Exploration*, 142, 130-137.
- (Suarez et al., 2000) Suarez E., Fernández J.A., Baeza A., Moro Mª.C., García D., Moreno J., & Lanaja J.Mª. (2000). "Proyecto Marna. Mapa de radiación gamma natural". Colección de Informes Técnicos 5. Consejo de Seguridad Nuclear.
- (**Tagami et al., 2009**) Tagami, K., & Uchida, S. (2009). Radium-226 transfer factor from soils to crops and its simple estimation method using uranium and barium concentrations. *Chemosphere*, 77(1), 105-114.
- (Tailliez et al., 2013) Tailliez, A., Pierrisnard, S., Camilleri, V., Keller, C., & Henner, P. (2013). Do rhizospheric processes linked to P nutrition participate in U absorption by Lupinus albus grown in hydroponics?.
 Journal of environmental radioactivity, 124, 255-265.
- (**Tang et al., 2017**) Tang, R. J., & Luan, S. (2017). Regulation of calcium and magnesium homeostasis in plants: from transporters to signaling network. *Current Opinion in Plant Biology*, *39*, 97-105.
- (Tessier et al., 1979) Tessier, A. P. G. C., Campbell, P. G., & Bisson, M. J.
 A. C. (1979). Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. *Analytical chemistry*, 51(7), 844-851.
- (**Tufail et al., 2010**) Tufail, M., Sabiha-Javied, Akhtar, N., & Akhter, J. (2010). Assessment of annual effective dose from natural radioactivity

- intake through wheat grain produced in Faisalabad, Pakistan. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, 283(3), 585-590.
- (Urrestarazu 2004) Urrestarazu, G. M. (2004). Tratado de cultivo sin suelo.
 3 a Edición. *Mundi-Prensa. Madrid, España*.
- (Vandenhove et al., 2009) Vandenhove, H., Olyslaegers, G., Sanzharova,
 N., Shubina, O., Reed, E., Shang, Z., & Velasco, H. (2009). Proposal for new best estimates of the soil-to-plant transfer factor of U, Th, Ra, Pb and Po. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100(9), 721-732.
- (Viehweger et al., 2010) Viehweger, K., & Geipel, G. (2010). Uranium accumulation and tolerance in Arabidopsis halleri under native versus hydroponic conditions. *Environmental and experimental botany*, 69(1), 39-46.
- (www.agroterra.com) www.agroterra.com. Siembra de trigo.
 https://blog.agroterra.com/descubrir/siembra-de-trigo/77961/. 2013.
 (Consultado el 31 de marzo de 2020).
- (www.nrcs.usda.gov) www.nrcs.usda.gov. Soil Texture Calculator, NRCS
 Soils USDA.
 https://www.nrcs.usda.gov/wps/portal/nrcs/detail/soils/survey/?cid=nrcs14
 2p2_054167. (Consultado el 29 de marzo de 2021).
- (www.mapa.gob.es) www.mapa.gob.es. Ministerio de Agricultura, Pesca y Alimentación.
 https://www.mapa.gob.es/en/agricultura/temas/producciones-agricolas/cultivos-herbaceos/cereales/. (Consultado el 03 de junio de 2021).
- (www.miteco.gob.es) www.miteco.gob.es Lodos de depuradora. https://www.miteco.gob.es/es/calidad-y-evaluacion-ambiental/temas/prevencion-y-gestion-residuos/flujos/lodos-depuradora/. (Consultado el 18 de agosto de 2021).