



UNIVERSIDAD NACIONAL DE LA PLATA

FACULTAD DE CIENCIAS EXACTAS

DEPARTAMENTO DE QUÍMICA

Tesis presentada para optar al grado de Doctor de la Facultad de Ciencias Exactas

**ESTUDIO RADIOLÓGICO GAMMA DE SUELOS DE LA ZONA ALEDAÑA A LA
CIUDAD DE LA PLATA, PROVINCIA DE BUENOS AIRES: MODELADO DE PERFILES DE
ACTIVIDAD Y CORRELACIONES CON LAS PROPIEDADES DEL SUELO**

María Luciana Montes

Directora: Dra. Judith Desimoni

Co-Directora: Dra. Marcela Taylor

2013

Agradecimientos

Al recordar el tiempo transcurrido durante el cual realicé este trabajo no puedo perder de vista que, sin duda alguna, no lo podría haber realizado sin el apoyo de muchísimas personas, algunas directamente relacionadas a él y otras no, quienes de una manera u otra hicieron que este camino sea más fácil de transitar.

Agradezco profundamente a mis papás, Nora y Carlos, porque sin el esfuerzo de ellos de toda la vida no podría haber llegado hasta aquí. También a mi hermano, Julián, que siempre me brinda su apoyo. Además a mi gatita Pincky, cuya compañía me hace la vida más linda.

A mi amiga incondicional de toda la vida, Celina, a quien no tengo que contarle mi vida porque la vive conmigo día a día y a Nicolás, que siempre está ahí. También a Juan, Pollo, Laura y Gustavo, por todos los momentos compartidos.

Gracias a Fede, quien me conoció en el peor momento de esta etapa, y que me brindó su apoyo incondicional.

A todos los compañeros de padel, que hacen que los viernes termine la semana con una sonrisa.

A las chicas de física por todos los momentos compartidos; Claudia por tantos mates y charlas, siempre apoyándome y siempre dispuesta a ayudarme; Virginia D, nuestra invaluable secretaria, siempre dispuesta a ayudar, aún en las cosas que no le corresponden; Fabiana por su ayuda en las preguntas de las materias y medidas magnéticas; y Virginia M, especialmente por hacer que Fede y yo nos encontremos, a Marta, por todos los momentos compartidos.

Quiero agradecer a las instituciones participantes de este trabajo, apoyo sin el cual no podría haberse realizado:

A el Grupo de Investigaciones de Servicios y Radioactividad en el Medio Ambiente (GISDRAMA) y el Laboratorio de Espectroscopía Mössbauer y Magnetismo (LAEMM), pertenecientes al Instituto de Física de La Plata (IFLP) - Departamento de Física – UNLP. En particular al Director del IFLP, Dr. Luis Epele, quien siempre apoyó el proyecto del GISDRAMA.

Al Instituto de Geomorfología y Suelos de la UNLP, el Departamento de Química, Facultad de Agronomía, UNLP, especialmente a Perla Imbellone y Victor Somoza, quienes me enseñaron muchas cosas acerca de los suelos.

Al Centro de Investigaciones Geológicas, CONICET; Cecilia Genazzini y Daniel Poire, por su ayuda indispensable en relación a la técnica de difracción de Rayos X.

A los ingenieros Luis Silva y Christopher Saa, por su colaboración en la implementación del programa para los ajustes de los perfiles de ^{137}Cs .

Al CONICET, por el financiamiento mediante Beca tipo I (período 2008-2011) y Beca tipo II (período 2012-2013) a la UNLP, por el otorgamiento de la dedicación Exclusiva otorgada por el Departamento de Física durante el año 2011.

Además, agradezco a los siguientes subsidios, sin los cuales no podría haberse realizado este trabajo: Estudios experimentales y teóricos de aspectos básicos de aleaciones de hierro con aplicaciones tecnológicas. IFLP - CONICET, PIP 112-200801-00230; Modelado computacional y técnicas experimentales de propiedades estructurales, electrónicas y magnéticas aplicadas a materiales de interés tecnológico. Agencia Nacional de Promoción Científica y Tecnológica, PICT 38047/2005; Estudio experimental y computacional de propiedades estructurales, electrónicas y magnéticas de sistemas de interés tecnológico. Universidad Nacional de La Plata, 11/X489.

Agradezco profundamente a quienes hicieron posible los muestreos de suelo, Cacho y Flavio, quienes también fueron fundamentales para la realización de otros aspectos de este trabajo. También a Jorge, nuestro ingeniero, por toda su ayuda y por los mates compartidos.

A Javier, siempre al pie del cañón para ayudarme y a Martin, por todas las charlas compartidas y por su colaboración desinteresada. A Leo, por su apoyo incondicional.

A Patricia, por su apoyo incondicional y por haberme ayudado en las determinaciones del carbono orgánico en suelos.

Agradezco profundamente a Roberto, quien me enseñó todo lo que se acerca de la espectroscopía Mössbauer, por todos los momentos compartidos en la oficina y por sus charlas siempre constructivas.

Agradezco especialmente a Marcela, quien supo contenerme en los peores momentos, dándome las palabras justas y animándome cuando todo parecía negro. Le agradezco también porque cuando nos quedamos solas se puso al hombro este trabajo.

Agradezco profundamente Judith, Ju, mi mamá de la Ciencia. Es muy difícil poder expresar con palabras todo lo que ella significó para mí. En primer lugar le agradezco porque aun cuando no se dedicaba específicamente a la radioactividad en el medio ambiente, me aceptó para poder realizar el Doctorado bajo su dirección en dicho tema. Le agradezco enormemente por la confianza que me brindó y por todo lo que me enseñó en el tiempo que compartimos y porque nunca me soltó la mano. Le agradezco también porque no sólo me hizo crecer profesionalmente, sino también en otros aspectos de la vida. Le agradezco porque se ocupó de mí hasta cuando le fue posible, aun estando ya sin poder venir al Departamento y también por pensar en mí en sus últimos momentos. Por todo esto y mucho más, mi eterno agradecimiento y cariño.

Contenido

Propuesta de Tesis.....	5
Propuesta de Tesis.....	6
Organización de la Tesis	8
Capítulo 1: Introducción	9
1.1 El suelo.....	9
1.1.1 <i>Minerales de arcillas</i>	10
1.1.2 <i>Materia orgánica</i>	14
1.2 Radioactividad en suelos.....	14
1.2.1 <i>Radioactividad natural</i>	15
1.2.2 <i>Radioactividad artificial</i>	19
1.3 ¹³⁷ Cs en el suelo.....	32
1.3.1 <i>Interacción con los componentes del suelo</i>	33
1.3.2 <i>Procesos de transporte, transformación y modelado</i>	36
1.4 Tasa de dosis absorbida y dosis efectiva.....	41
1.4.1 <i>Estimación de la contribución terrestre a la dosis absorbida y dosis efectiva</i>	42
Bibliografía	44
Capítulo 2: Descripción del área de estudio	47
2.1 Características generales	47
2.1.1 <i>Clima</i>	48
2.1.2 <i>Topografía y Geomorfología</i>	49
2.1.3 <i>Suelos</i>	50
2.2 Suelos estudiados	50
2.2.1 <i>Partido de La Plata – Zona El Peligro (EP)</i>	52
2.2.2 <i>Partido de La Plata – Zona Arroyo Correa (AC)</i>	53
2.2.3 <i>Partido de La Plata – Zona Los Hornos (LH)</i>	54
2.2.4 <i>Partido de Berisso – Zona Villa Argüello (VA)</i>	54
2.2.5 <i>Partido de Berazategui – Parque Pereyra Iraola (PP)</i>	55
2.2.6 <i>Partido de La Plata – Radio Provincia (RP)</i>	56
2.2.7 <i>Ezeiza (EZE)</i>	56
Bibliografía	57
Capítulo 3: Técnicas experimentales.....	58
3.1 Muestreo de suelos.....	58
3.2 Medidas de dosis	60
3.3 Medidas de actividad de emisores γ	61
3.4 Técnicas complementarias utilizadas para el estudio del suelo	70
3.4.1 <i>Medición del carbono orgánico (Dicromatovolumetría)</i>	70
3.4.2 <i>Determinación de pH</i>	71
3.4.3 <i>Caracterización magnética</i>	71
3.4.4 <i>Análisis Hiperfino: espectroscopia Mössbauer</i>	72
3.4.5 <i>Análisis granulométrico: determinación de la textura y la clase textural</i>	75
3.4.6 <i>Análisis mineralógico: Difracción de Rayos X</i>	76
Bibliografía	78
Capítulo 4: Resultados.....	79
4.1 Medidas de dosis <i>in situ</i>	79

4.2 Caracterización radiológica de los suelos	79
4.3 Caracterización del suelo – muestras crudas	85
4.3.1 Porcentaje de carbono orgánico y pH.....	86
4.3.2 Caracterización magnética: VSM.....	89
4.3.3 Susceptibilidad AC y Análisis hiperfino (Espectroscopia Mössbauer)	90
4.3.4 Difracción de Rayos X.....	97
4.3.5 Análisis textural	97
4.4 Caracterización del suelo – muestras de arcilla	99
4.4.1 Análisis radiológico de la fracción de arcilla	100
4.4.2 Análisis hiperfino de la fracción de arcilla	101
4.4.3 Fases cristalinas en la fracción de arcilla: Difracción de Rayos X.....	103
Bibliografía	106
Capítulo 5: Discusión.....	107
5.1 Propiedades de los suelos.....	107
5.1.1 Correlación entre los parámetros obtenidos con las distintas técnicas de caracterización del suelo	112
5.2 Actividad de radionucleidos naturales	114
5.2.1 Cadena del ^{232}Th	114
5.2.2 Cadena del ^{238}U : actividad del ^{226}Ra	118
5.2.3 Actividad del ^{40}K	122
5.2.4 Correlación entre la actividad de los radionucleidos naturales	129
5.2.5 Dosis anual equivalente: contribución de los radionucleidos naturales presentes en suelos	130
5.3 Perfiles de actividad de ^{137}Cs	134
5.3.1 Modelado	137
5.3.2 Tasa de transferencia efectiva del estado móvil al ligado en forma irreversible.....	141
5.3.3 Inventarios	143
5.3.4 Contribución del ^{137}Cs a la dosis.....	147
Bibliografía	149
Capítulo 6: Conclusiones y Perspectivas	151
Anexo I: Resultados	157
A - Espectros gamma	157
B – Ciclos de histéresis	163
C – Espectros Mössbauer.....	166
D – Difractogramas.....	172
Anexo II: Publicaciones Originadas en el Trabajo de Tesis	189
Glosario	190

Propuesta de Tesis

Cuando se habla de radioactividad, en general se piensa en centrales nucleares, en los accidentes ocurridos en las centrales nucleares de Chernóbil y Fukushima y se la asocia con la palabra peligro. Sin embargo, el planeta Tierra es naturalmente radioactivo y el hombre se ha desarrollado y evolucionado en él.

Las fuentes de radioactividad natural en nuestro planeta son dos; los rayos cósmicos provenientes del espacio exterior que interactúan con la atmósfera y generan los así llamados radionucleidos cosmogénicos, y la corteza terrestre y el suelo, que contienen cantidades traza de elementos radioactivos. La radioactividad proveniente del decaimiento de los radionucleidos naturales genera lo que se denomina fondo radioactivo natural.

Desde que el hombre descubrió la radioactividad ha hecho uso de ella, muchas veces de manera pacífica y beneficiosa para la humanidad, y otras veces con fines bélicos. Así, las prácticas que involucran la utilización de material radioactivo pueden modificar las condiciones radiológicas naturales, ya sea modificando la distribución del material radioactivo natural o añadiendo material radioactivo de origen antropogénico. Por ejemplo, los ensayos de explosión de bombas nucleares de tipo atmosféricos liberaron al ambiente una gran variedad de radionucleidos. Proveniente de estos ensayos, en la actualidad, en los suelos sólo se encuentran aquellos que son volátiles y que poseen una vida media larga.

Los niveles de radioactividad a los que estará expuesto el ser humano dependerán de factores como altura sobre el nivel del mar, condiciones geográficas y topográficas del lugar específico, condiciones socioeconómicas de las personas y la presencia de radionucleidos antropogénicos en el medio ambiente. La exposición a la radiación es ponderada tomando en cuenta la dosis recibida por el individuo.

En Argentina, el ente regulador en todo lo relacionado a la actividad nuclear es la Autoridad Regulatoria Nuclear. Este organismo es el encargado de establecer los límites anuales de dosis recibida por radiación, tanto para trabajadores como para el público en general. El límite de dosis anual efectiva equivalente para el público en general debido a una práctica que involucra la utilización de material radioactivo es de 1 mSv, por encima del fondo radioactivo natural. Por lo tanto, para poder analizar si un determinado grupo de personas está expuesto a niveles de radioactividad según lo estipulado por la legislación, es de fundamental importancia conocer cuáles son las condiciones radiológicas naturales del lugar donde habitan.

Argentina es un país que cuenta con un plan nuclear. Cerca del 8% de la energía es provista por las dos centrales nucleoelectricas que actualmente se encuentran en funcionamiento: Atucha I, la primer Central Nuclear de Argentina y de América Latina, emplazada en Lima, provincia de Buenos Aires y la Central Nuclear Embalse, ubicada en la costa sur del Embalse del Río Tercero, provincia de Córdoba. Además, en poco tiempo se espera integrar al sistema la Central Nuclear Atucha II, ubicada en el emplazamiento de Atucha I, donde también se espera el emplazamiento del reactor CAREM. Argentina también es un país productor de radionucleidos. Por ejemplo, en la Central Nuclear de Embalse Río Tercero se produce ^{60}Co para su utilización en medicina y la industria, mientras que en el Centro Atómico Ezeiza se produce ^{99}Mo , ^{131}I , ^{32}P , ^{51}Cr , ^{201}Tl y ^{18}F y moléculas marcadas para uso medicinal, agropecuario e industrial. En Mendoza, en el Instituto de Sanidad y Calidad Agropecuaria Mendoza (ISCAMEN) se encuentra la única planta de irradiación de moscas del país.

A pesar de la existencia de todas estas prácticas, nuestro país no cuenta con redes de monitoreo radiológicas, independientes de la ARN, que lleven a cabo estudios sistemáticos de los niveles de radioactividad en el medio ambiente. Más aún, Argentina no cuenta con una línea de base radiológica que refleje la condición actual de los niveles de radioactividad ambiental.

Propuesta de Tesis

La información disponible en la bibliografía brinda pocos datos acerca de las condiciones radiológicas naturales en suelos argentinos y tampoco se cuenta con mucha información acerca de la medida en que la lluvia radioactiva proveniente de los ensayos nucleares atmosféricos ha contaminado los suelos argentinos. En este sentido, tampoco se conoce que mecanismos dominan la interacción de los radionucleidos antropogénicos con los componentes de nuestros suelos.

El conocimiento acerca de la migración de los radionucleidos antropogénicos en los suelos es fundamental para poder predecir el comportamiento del contaminante, evaluando, por ejemplo, si será retenido por el suelo, si alcanzará el agua subterránea o si podrá ser transferido a la vegetación, entrando así a la cadena alimentaria. Por otra parte, y dado que nuestro planeta ya presenta una contribución antropogénica al fondo radioactivo natural proveniente de los ensayos nucleares atmosféricos, si no se conocen estos niveles existentes, no se podría evaluar otra potencial fuente de estos radionucleidos.

El laboratorio GISDRAMA cuenta con un detector de germanio hiperpuro, apto para la detección de radiación γ en muestras ambientales. Por lo tanto, los objetivos de este trabajo se basarán en la posibilidad de detección de este tipo de radiación.

En este marco y teniendo en cuenta el estado actual de conocimiento, el principal objetivo de esta Tesis es comenzar con la determinación de la línea de base radiológica en suelos de la provincia de Buenos Aires, iniciando los estudios en la zona aledaña a la ciudad de La Plata. En este sentido se planea:

- Estudiar la distribución de actividad del ^{40}K y de las cadenas naturales de ^{232}Th y ^{238}U (^{226}Ra) en suelos de la región de la ciudad de La Plata.
- Investigar la presencia en suelos de emisores γ de origen antropogénicos y de existir, estudiar la distribución en profundidad de sus actividades en la región.
- De existir algún radionucleido antropogénico emisor γ , predecir y modelar la migración en los suelos de la región, adecuando los modelos existentes en la bibliografía a las condiciones regionales.
- Estimar la dosis efectiva equivalente anual originada por el decaimiento de los radionucleidos naturales y antropogénicos presentes en el suelo.

Dado que la distribución de radionucleidos puede ser afectada por diversas variables físicas y químicas de los suelos, de haber variaciones en la distribución, se buscará poder asociar dichas diferencias con distintas propiedades del medio difusor. Para lograr esto, se planea realizar determinaciones de las siguientes propiedades de los suelos:

- pH del suelo; mediante técnica estandarizada en agua destilada.
- Porcentaje de carbono orgánico; mediante el Método de Walkley Black.
- Textura y clase textural; con el método basado en la ley de Stokes.
- Fases minerales presentes; utilizando Difracción de Rayos X.
- Fases de Fe presentes; usando Espectroscopía Mössbauer.
- Propiedades magnéticas; empleando un susceptómetro y Magnetómetro de muestra vibrante.

Con el fin de comenzar con la determinación de la línea de base radiológica y lograr los objetivos propuestos, se determinaron seis perfiles de actividad del ^{40}K y de las cadenas naturales del ^{238}U (^{226}Ra) y del ^{232}Th . Además, se determinaron los perfiles de actividad del ^{137}Cs , único

radionucleido emisor γ detectado en los suelos estudiados. El análisis radiológico fue complementado con estudio de propiedades del suelo.

Organización de la Tesis

En el Capítulo 1 se resumen algunas propiedades del suelo y se presentan las propiedades de los minerales de interés, junto con los parámetros característicos de las distintas técnicas experimentales utilizadas, presentadas en el Capítulo 3. Se incluye también el tema de radioactividad natural y antropogénica en suelos, exponiendo valores de actividad en suelos de distintas partes del mundo, haciendo hincapié en los publicados para América del Sur. Se aborda el tema de la lluvia radioactiva proveniente de los ensayos nucleares atmosféricos realizados en el Hemisferio Sur y se presentan los modelos utilizados para estudiar la migración del ^{137}Cs en el suelo. En este sentido, se presentan los valores de velocidad de convección y coeficiente de dispersión hidrodinámico extraídos de la bibliografía para suelos de América del Sur y los valores medios mundiales. Finalmente, se introduce la temática de dosis, presentando las distintas fuentes de exposición y la metodología de estimación de tasa de dosis absorbida y de dosis efectiva anual externa a partir de las medidas de radioactividad realizadas en suelos.

En el Capítulo 2 se describen las características generales, geomorfológicas y de suelos de la región estudiada y se exponen parámetros de interés para este trabajo.

Por su parte, en el Capítulo 3 se presenta la técnica de espectroscopía gamma de alta resolución, junto con las técnicas complementarias utilizadas para la caracterización del suelo.

Finalmente, los Capítulos 4, 5 y 6 presentan los resultados, su análisis y las conclusiones desprendidas del mismo, respectivamente.

Capítulo 1: Introducción

1.1 El suelo

Dado que existe una variedad de especialistas que estudian el suelo, hay muchas definiciones para él. En este trabajo consideramos al suelo como la capa externa de la superficie terrestre, fragmentada y meteorizada que se forma por la desintegración y descomposición de rocas por medio de procesos físicos y químicos y que está influenciada por la actividad biológica. Esta capa interactúa por encima con la atmósfera y por debajo con los sustratos y sirve como receptor de contaminantes, proveyendo protección a las aguas subterráneas (Hillel, 1998).

El suelo es un medio heterogéneo, polifásico, particulado, disperso y poroso. Las fases que lo componen son 3: sólida o matriz del suelo, líquida o solución del suelo y gaseosa o atmósfera del suelo (Hillel, 1998). Las características que presente este medio determinarán la forma en que los distintos contaminantes se dispersen en él.

La fase sólida del suelo está formada por materiales amorfos, como materia orgánica, y por partículas que varían en forma, tamaño, orientación y composición química. Las propiedades de la fase sólida pueden diferir en profundidad y espacio y las características del perfil dependen de los llamados factores de formación del suelo, como el clima, material parental, vegetación, topografía y tiempo (Hillel, 1998). Como consecuencia de la pedogénesis, un suelo desarrollado presenta distintos estratos u horizontes, los cuales pueden diferir en textura y el contenido y tipo de minerales presentes. Se conoce como textura del suelo al porcentaje en peso de las fracciones que lo componen (principalmente arena, limo y arcilla). Los límites de división entre las fracciones de arena, limo y arcilla no están universalmente aceptados. Aquí se tomará la fracción de arena como aquella compuesta por partículas de tamaño de entre 2,00 mm y 0,05 mm, la de limo entre 0,05 mm y 0,002 mm y la de arcilla las partículas con tamaños menores a 0,002 mm, que es la división utilizada por el Departamento de Agricultura de Estados Unidos (United States Department of Agriculture, 2013). Una vez determinada la textura del suelo se puede designar la clase textural a la que el mismo pertenece, mediante el uso del triángulo de clases texturales (SSSA, 2008).

La **fracción de arcilla** es la más importante en términos de la retención y movilidad de contaminantes, ya que presenta área específica alta y superficies e intercapas cargadas que podrían favorecer el intercambio catiónico. Los distintos minerales que componen las arcillas difieren en

cuanto a propiedades y predominio. En regiones templadas predominan los silicatos de aluminio, mientras que en las tropicales los óxidos e hidróxidos de hierro y aluminio (Hillel, 1998).

Los silicatos de aluminio pueden sufrir sustituciones de iones durante la cristalización, lo que provoca un desbalance de cargas en la red. Este desbalance permite atraer a distintos tipos de iones. Así, permite sorber iones en superficie y en espacios interlaminares. Este efecto es muy importante porque afecta la retención y liberación de nutrientes, sales y contaminantes en los suelos, por ejemplo el Cs^+ (Cornell, 1993).

Si bien la determinación de la textura es un análisis básico para el estudio de las propiedades de los suelos, no da información acerca de cuáles son los minerales presentes en el medio, para lo que se requieren estudios adicionales. La mineralogía del suelo, es decir, que tipo y cantidad de minerales se encuentran en el suelo, se determina rutinariamente mediante la técnica de Difracción de Rayos X (DRX) (SSSA, 2008).

1.1.1 Minerales de arcillas

La **Caolinita** es el tipo de arcilla 1:1 más común encontrada en los suelos. Su capa básica es un par de láminas sílice-alúmina que se apilan y se mantienen juntas por ligaduras hidrógeno en una red multicapa que frecuentemente forma capas hexagonales (Hillel, 1998). Como entre las capas básicas no pueden penetrar los iones ni el agua, las mismas no pueden ser separadas y, dado que sólo las capas externas están expuestas, presenta una superficie específica relativamente baja, en relación a otros minerales. La Tabla 1.1 resume los valores de los parámetros de interés para la caolinita, publicados en la bibliografía, para las distintas técnicas utilizadas en este trabajo (Capítulo 3), entre ellos el valor de la susceptibilidad, el carácter magnético, los parámetros hiperfinos esperados del ajuste de espectros Mössbauer y los relacionados a DRX. Si bien la caolinita pura no contiene Fe, ha sido demostrado que el ión férrico puede sustituir al aluminio en pequeñas concentraciones (Vanenbergh 1991, Murad, 1998), lo que permite el estudio de este mineral mediante espectroscopia Mössbauer. En sistemas diluidos, la distancia entre los entornos de Fe conduce a que los cambios en un entorno no sean registrados instantáneamente por otro. En los espectros Mössbauer este fenómeno se modela considerando sitios de Fe que experimentan un campo magnético hiperfino relativamente bajo. En particular, para DRX se presenta la posición de la línea que corresponde a la difracción en la dirección del plano 001 en el difractograma para caolinita pre-tratadas con magnesio.

Tabla 1.1: Parámetros característicos de la caolinita para DRX (Claver, 1971), espectroscopía Mössbauer (EM) (Vanenberghe 1991), comportamiento magnético (CM) y susceptibilidad magnética (SM) (Potter et al., 2004).

DRX	EM	CM	SM ($10^{-8} \text{m}^3/\text{kg}$)
7,15 Å (saturada con Mg)	$\delta = 0,37 \text{ mm/s}$	diamagnética	-2,0
desaparición del pico al calentar a 823 K	$\Delta = 0,57 \text{ mm/s}$		

La **illita** es un mineral tipo 2:1 no expandible y pertenece al grupo de las micas (Hillel, 1998). Este mineral presenta sustitución isomórfica del Al^{3+} por Si^{4+} en el tetraedro, en un 15 % de los casos (Hillel, 1998) lo que da una alta densidad de carga negativa que puede ser compensada, por ejemplo, con la incorporación de K^+ a la red (Vandenberghe, 1991). En las illitas el Al^{3+} puede ser reemplazado por Fe^{3+} (Vandenberghe, 1991) razón por la cual contienen Fe en forma permanente en el rango de < 1% hasta 8 % en peso (Murad, 1998). En la literatura, se encuentran varios modelos para el ajuste de los espectros Mössbauer de este mineral. En la Tabla 1.2 se muestran los parámetros hiperfinos correspondientes al modelo de dos sitios de Fe^{3+} y uno de Fe^{2+} . En cuanto a los datos esperados por DRX, las illitas saturadas con Mg presentan un pico de 9,9 Å, que se desplaza a 10,1 Å cuando están saturadas con Mg y glicoladas (Claver, 1971). La Tabla 1.2 también resume el carácter magnético y los valores de susceptibilidad de la arcilla.

Tabla 1.2: Parámetros característicos de la illita para DRX (Claver, 1971), espectroscopía Mössbauer (Vanenberghe 1991) y susceptibilidad magnética (Potter et al., 2004).

DRX	EM	CM	SM ($10^{-8} \text{m}^3/\text{kg}$)
9,9-10,1 Å (saturada con Mg- saturada con Mg y glicolada)	Fe^{3+} $\delta = 0,33 \text{ mm/s}$	paramagnética	15,0
	$\Delta = 0,65 \text{ mm/s}$		
	Fe^{3+} $\delta = 0,38 \text{ mm/s}$		
	$\Delta = 1,21 \text{ mm/s}$		
	Fe^{2+} $\delta = 1,14 \text{ mm/s}$		
	$\Delta = 2,75 \text{ mm/s}$		

Otros minerales del tipo 2:1 son la **montmorillonita** (perteneciente al grupo de las esmectitas) y la **vermiculita**. Ambas a diferencia de la illita, son arcillas del tipo expandible. En presencia de agua los cationes que la constituyen, para compensar la carga, tanto de los planos basales como en las intercapas, pueden ser intercambiados por otros cationes presentes en la solución del suelo, lo que le da una capacidad de intercambio catiónico superior a la de la illita (Hillel, 1998). En la montmorillonita es común que el Al^{3+} sea reemplazado por Fe^{3+} y así a temperatura ambiente (RT) presenta un espectro Mössbauer que puede ser ajustado mediante dos sitios paramagnéticos

(Vandenberghe, 1991). El pico esperado en los difractogramas para este mineral saturado con Mg se superpondría con aquellos generados por la hipotética presencia de vermiculita y clorita, pero se desplaza a mayores ángulos cuando además la muestra es glicolada (ver Tabla 1.3 para un detalle de los parámetros relevantes).

Tabla 1.3: Parámetros característicos de la montmorillonita para DRX (Claver, 1971) y espectroscopía Mössbauer (Vandenberghe 1991), mientras que la susceptibilidad magnética fue tomada de Dearing, 1999.

DRX	EM	SM ($10^{-8} \text{m}^3/\text{kg}$)
14,0-15,0 Å (saturada con Mg, superposición con vermiculita y clorita)	Fe ³⁺ $\delta = 0,35 \text{ mm/s}$ $\Delta = 0,55 \text{ mm/s}$	2,7–5,0
17,7-18,0 Å (saturada con Mg y glicolada)	Fe ³⁺ $\delta = 0,37 \text{ mm/s}$ $\Delta = 0,9-1,1 \text{ mm/s}$	esmectita

La hematita es uno de los óxidos de Fe más comunes encontrados en suelos (Murad, 1998, Evans y Heller, 2003). Presenta una estructura cristalina hexagonal en la cual los planos alternados contienen iones Fe³⁺ magnetizados en direcciones opuestas (Evans y Heller, 2003). Ya que los momentos magnéticos no son perfectamente antiparalelos, es un mineral del tipo ferromagnético débil, con una temperatura de Curie de 948 K (cambio de comportamiento magnético ferromagnético débil a paramagnético) y una temperatura de Morin de 258 K, por debajo de la cual tiene un comportamiento antiferromagnético. Esta última transición se puede observar mediante la técnica de espectroscopía Mössbauer, ya que los parámetros hiperfinos cambian notablemente (Tabla 1.4). Por otro lado, cuando se sustituye Fe por Al en muestras de hematita (Vandenbergue, 1991) la transición de Morin se observa a temperaturas más bajas. La Tabla 1.4 muestra las características mencionada de la hematita.

Tabla 1.4: Valores de magnetización de saturación (Evans y Heller, 2003) y parámetros característicos obtenidos por espectroscopía Mössbauer (Vandenberghe 1991) para la hematita.

Transición	EM	CM
Morin T = -15°C	T = 4 K $\delta = 0,48 \text{ mm/s}$ $\Delta = 0,19 \text{ mm/s}$ H = 54,20 T	antiferromagnético
°	RT $\delta = 0,36 \text{ mm/s}$ $\epsilon = -0,10 \text{ mm/s}$ H = 51,70 T	ferromagnético débil Ms = 0,4 Am ² /kg
Curie T = 675°C		paramagnético

Otro de los óxidos de Fe comunes encontrados en suelos es la **magnetita**, el mineral magnético más importante sobre La Tierra (Evans y Heller, 2003). La Tabla 1.5 muestra los valores relacionados con la magnetita, relevantes para este trabajo.

Tabla 1.5: Datos de espectroscopía Mössbauer de Vanenberghe 1991 y Dézsi et al., 2008, de comportamiento magnético de Evans y Heller, 2003 para la magnetita.

Transición		EM	CM
Verwey	115 K	$\delta = 0,38$ mm/s	ferrimagnético
T = 123 K		$\Delta = 0,01$ mm/s	
		H = 50,40 T	
		$\delta = 0,47$ mm/s	
		$\Delta = -0,10$ mm/s	
		H = 51,60 T	
		$\delta = 0,77$ mm/s	
		$\Delta = ,.02$ mm/s	
		H = 50,50 T	
		$\delta = 0,96$ mm/s	
		$\Delta = -0,30$ mm/s	
		H = 48,20 T	
		$\delta = 0,98$ mm/s	
		$\Delta = 1,88$ mm/s	
		H = 35,70 T	
			ferrimagnético
	RT	$\delta = 0,28$ mm/s	Ms = 92 Am ² /kg
	Fe ³⁺	$\varepsilon = 0,00$ mm/s	
		H = 49,10 T	
	Fe ^{2.5+}	$\delta = 0,66$ mm/s	
		$\varepsilon = 0,00$ mm/s	
		H = 46,00 T	
	Curie		paramagnético
	T = 853 K		

Este óxido presenta una estructura tipo espinela. Este arreglo posee dos tipos de espacios intersticiales donde se pueden acomodar los cationes: tetraédricos (sitios A) y octaédricos (sitios B). Dado que los momentos magnéticos de estos dos sitios son antiparalelos y de magnitud diferente, la magnetita es un material ferrimagnético. Todos los Fe localizados en los sitios A son Fe⁺³, mientras que los ubicados en los B (con el doble de sitios para alojar cationes que los A) son mitad Fe⁺³ y mitad Fe⁺². El resultado neto es que los momentos trivalentes se cancelan, dando un momento magnético no nulo debido a los iones divalentes (Evans y Heller 2003). Los espectros Mössbauer a temperatura ambiente resultan en un espectro magnéticamente desdoblado con dos componentes parcialmente resueltas, cuyas líneas pueden ajustarse con un sitio de Fe³⁺ y otro de Fe²⁺ (o Fe^{2.5+}) (Vandenberghe, 1991). Al igual que la hematita, la magnetita presenta dos temperaturas donde su comportamiento magnético cambia: La temperatura de Curie, a partir de la cual se comporta como un material paramagnético debido a que la energía térmica es lo suficientemente grande como para que los momentos magnéticos cambien de un estado a otro, y la temperatura de Verwey, por debajo de la cual se produce una redistribución cristalográfica de los iones de Fe, aunque sigue

comportándose ferrimagnéticamente. Los espectros Mössbauer tomados por debajo de esta temperatura se vuelven muy complejos, existiendo modelos de ajuste con 5 sitios (Vandenberghe 1991, Dézsi et al., 2008).

Cabe aclarar que tanto la hematita como la magnetita son óxidos de hierro que forman parte de la fracción gruesa del suelo. Como se verá más adelante, la cuantificación de las fases presentes en el suelo se realizó sobre la fracción de arcilla, por lo que no se incluyen datos de DRX para estos dos óxidos.

1.1.2 Materia orgánica

La fuente de materia orgánica (MO) en el suelo son restos orgánicos de origen vegetal y animal de todo tipo. La MO es una sustancia de composición variable y posiblemente sea uno de los compuestos más complejos de la naturaleza (Imbellone et al., 2010). El componente más estable de la MO es el humus, material oscuro predominante en el horizonte A, definido según la *Soil Science of America* como la parte más o menos estable y bien descompuesta de la materia orgánica presente en suelos minerales (Soil Science Society of America, 2008).

Las partículas de humus, generalmente amorfas, están cargadas negativamente y cuando están hidratadas actúan como ligantes, siendo capaces de adsorber constituyentes orgánicos e inorgánicos, incluyendo cationes. En general, el humus se une con los minerales de arcilla, proporcionando una mejor estructura al suelo. El contenido de humus generalmente disminuye con el aumento de la profundidad, y se hace despreciable al finalizar la zona del suelo donde se encuentran las raíces (Hillel, 1998). El carbono, supuesto como el 58 % de la materia orgánica, es el elemento principal que puede cuantificarse y las estimaciones de la misma están basadas en el estudio de dicho elemento. Magnéticamente hablando, la materia orgánica presenta un comportamiento diamagnético, con una susceptibilidad magnética de $-0,9 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3/\text{kg}$ (Dearing, 1999).

1.2 Radioactividad en suelos

El suelo contiene naturalmente cantidades traza de elementos radioactivos. Dentro de ellos se pueden encontrar los radionucleidos primordiales y los secundarios. Los primordiales son aquellos que presentan vidas medias lo suficientemente largas como para que aún se encuentren en el medio ambiente (^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th y ^{40}K), mientras que los secundarios se originan por el decaimiento radioactivo de los primordiales, es decir, forman parte de las cadenas radioactivas naturales. Además, en la actualidad, en todos los suelos se encuentran detritos radioactivos provenientes de los ensayos nucleares atmosféricos realizados en el pasado. Por su parte, las zonas donde se han producido

accidentes nucleares o se ha depositado material radioactivo proveniente de ataques bélicos, pueden presentar niveles de actividad mayores a las de su fondo natural.

1.2.1 Radioactividad natural

Cuando el planeta se formó, la corteza terrestre quedó conformada por una gran variedad de elementos, algunos de los cuales son radioactivos. Los más relevantes para el cálculo de la dosis externa recibida por el hombre son los pertenecientes a las cadenas naturales del ^{238}U y ^{232}Th y el ^{40}K (UNSCEAR, 2000; Al-Jundi et al., 2009). Este último es uno de los tres isótopos del potasio natural, con abundancia isotópica de 0,0117 % y una vida media de $1,277 \times 10^9$ a. Otros que pueden mencionarse son ^{87}Rb , ^{138}La , ^{176}Lu , ^{147}Sm y los pertenecientes a la cadena del ^{235}U , cuya concentración es tan baja que la contribución a la dosis es despreciable.

1.2.1.1 Radionucleidos primordiales

La cadena radioactiva originada por el decaimiento del ^{238}U (abundancia isotópica de 99,275 % y una vida media de $4,4683 \times 10^9$ a; Lederer y Shirley, 1978) está compuesta por 16 radionucleidos y un elemento estable que da fin a la cadena, el ^{206}Pb (Desimoni et al., 2012).

Los radionucleidos que conforman la cadena del ^{232}Th son 12, partiendo del padre (^{232}Th ; vida media de $1,41 \times 10^{10}$ a; Lederer y Shirley, 1978) hasta llegar al ^{208}Pb , elemento estable (Desimoni et al., 2012).

La cadena del ^{235}U es la menos importante debido a la abundancia isotópica relativamente pequeña del radionucleido padre (0,71%). Esta cadena consta de 14 radionucleidos, siendo el ^{207}Pb el elemento estable que le pone fin (Desimoni et al., 2012). A pesar de que la contribución a la dosis puede no ser significativa, la contribución de esta cadena a los espectros γ debe ser tomada en cuenta.

Analizando el balance de actividades en la cadena del ^{238}U , se encuentra que el ^{234}U está separado del padre solamente por dos radionucleidos de vida media corta (el ^{234}Th y el $^{234\text{m}}\text{Pa}$). Para los valores de vida media involucrados, la migración del ^{234}Th y el $^{234\text{m}}\text{Pa}$ hacia otra zona del suelo es muy poco probable, por lo que el ^{238}U y el ^{234}U se encuentran en equilibrio secular (L'Annunziata, 2007). Por su parte, entre el ^{226}Ra y el ^{238}U hay cuatro radionucleidos intermedios y dado que el ^{226}Ra es más móvil en el ambiente que el ^{238}U , podría existir un leve desequilibrio entre estos radionucleidos. El ^{226}Ra es un emisor α , padre del ^{222}Rn (gas emisor α) cuya descendencia, ^{214}Po y ^{214}Bi de vida media corta, también emite este tipo de radiación. El Rn es capaz de difundir a través del suelo, llegar a la atmósfera y en este punto de la cadena podría perderse el equilibrio secular.

Al igual que sucede en la cadena del ^{238}U , los miembros de la cadena del ^{232}Th podrían no encontrarse en equilibrio secular en el suelo. Esto se debe principalmente al hecho que el ^{228}Ra

(miembro de la cadena) tiene una vida media de 5,57 a, tiempo suficiente como para que este radionucleido difunda en el medio ambiente. En esta cadena el gas generado por el decaimiento del ^{228}Ra , es el ^{220}Rn . Tanto él como sus descendientes tienen vidas medias muy cortas y la probabilidad de que escapen del suelo es relativamente baja.

1.2.1.2 Niveles de actividad natural en distintas partes del mundo

La Tabla 1.6 resume los valores de actividad de los radionucleidos naturales en suelos de distintas partes del mundo (UNSCEAR, 2000; UNSCEAR, 2008) publicados por UNSCEAR (acrónimo de *United Nations Scientific Committee On the Effects of Atomic Radiation*).

Como puede verse, la actividad del ^{40}K varía entre 7 Bq/kg y 1600 Bq/kg. Para América del Sur UNSCEAR sólo publica datos para suelos argentinos, con una actividad media de 650 Bq/kg, variando entre 540 Bq/kg y 750 Bq/kg (UNSCEAR 2000, UNSCEAR 2008). El valor medio mundial de actividad de ^{40}K en suelos es de 412 Bq/kg (UNSCEAR 2008). Para el caso del ^{226}Ra , las concentraciones más bajas determinadas fueron de 1 Bq/kg y las más altas de 1000 Bq/kg. Como puede observarse de la Tabla 1.6, no hay datos publicados por UNSCEAR para Sudamérica. El valor medio mundial aceptado es de 32 Bq/kg (UNSCEAR 2008). En cuanto al ^{232}Th , se han determinado actividades tan bajas como 2 Bq/kg y tan altas como 360 Bq/kg. La actividad media mundial de este radionucleido en suelos es de 45 Bq/kg (UNSCEAR 2008).

Tabla 1.6: Niveles de actividad natural en suelos de distintas regiones (UNSCEAR., 2000, 2008).

País/Región	^{40}K		^{238}U		^{226}Ra		^{232}Th	
	Media	intervalo	Media	intervalo	Media	intervalo	Media	intervalo
África								
Argelia	370	66–1150	30	2–110	50	5–180	25	2–140
Egipto	320	29–650	37	6–120	17	5–64	18	2–96
Libia	270	265–282	10,5	8,7–12,8	8,8	8,3–9,4	9,5	7,6–9,7
Mauritania	28	0–55	8	1–22			12	1–32
América del Norte								
México	244	115–416						
Estados Unidos	370	100–700	35	4–140	40	8–160	35	4–130
América Central								
Costa Rica	140	6–380	46	11–130	46	11–130	11	1–42
Cuba	328	20–2260			21,4	0,5–115	5	0,05–20
América del Sur								
Argentina	654	559–773						
Asia								
Bangladesh	1061	400–2168	52	18–95	51	18–98	79	28–167
China	440	9–1800	33	2–690	32	2–440	41	1–360
Hong Kong	530	80–1100	84	25–130	59	20–110	95	16–200
Provincia de Taiwán	431	266–607	30	14–45	30	14–45	44	30–71
India	400	38–760	29	7–81	29	7–81	64	14–160
Japón	310	15–990	29	2–59	33	6–98	28	2–88
Kazakstán		40–80		30–60				50–150
Indonesia	197	75–523			13,8	7–54	12,3	2–58
Malaysia	310	170–430	66	49–86	67	38–94	82	63–110
Filipinas	212	33–585	14	2–53			14	1–63

Corea	670	17–1500			39	6–140	57	5–204
Tailandia	230	7–712	114	3–370	48	11–78	51	7–120
Armenia	360	310–420	46	28–70	51	32–77	30	29–60
Azerbaijan	120	60–180	26	26–50	25	15–35	33	10–56
Irán	640	290–710			30	20–97	39	13–55
Iraq	469	146–518			16,8	0,5–35		
Kuwait	332	4–496	19	6–65	12	2–28	10	1,5–16
Siria	270	87–780	23	10–64	20	13–32	20	10–32
Europa								
Dinamarca	460	240–610			17	8,5–29	19	8,1-30
Estonia	510	140–1120			35	6–310	27	5-42
Finlandia	640	300–1200	41	13-110	41	13–110	46	20-115
Iceland	140	40–240	10		8,5	2–15	6,5	0,5-11
Lituania	536	241–800			41	10–96	21	10-46
Noruega	850		50		50		45	
Suecia				10-1000		10–1000		2-100
Belgica	460	100–1000			32	6–70	33	6–53
Alemania		40–1340		11–330	70	5–200		7–134
Irlanda	418	11–1317	39	4–543	46	6–292	25	3–71
Luxemburgo	620	80–1800			35	6–52	50	7–70
Paises bajos		120–730		5–53	23	6–63		8–77
Portugal	840	220–1230	49	26–82	44	8–65	51	22–100
España	578	31–2040			38	8–310	41	2–258
Suiza	370	40–1000	26	9–80	37	17–140	25	4–65
Inglaterra		0–3200		2–330	37			1–180
Bulgaria	400	40–800	40	8–190	45	12–210	30	7-160
Republica Checa	613	262–1599			44	18–275	41	18-168
Hungria	370	79–570	29	12–66	33	14–76	28	12-45
Polonia	410	123–1020	25,2	4,2–124	25,2	4,2–124	24,7	3,7-86
Rumania	490	250–1100	32	8–60	32	8–60	38	11-75
Rusia	520	100–1400	19	0–67	27	1–76	30	2-79
Eslovaquia	520	200–1380	32	15–130	32	12–120	38	12-80
Eslovenia	374	15–1410			41	2–208	35	2-90
Albania	348	91–665	34	2,5–141			18,3	0,8–61
Croacia	423	107–748	53	19–135	43	18–80	37	10–72
Chipre	140	0–670			17	0–120		
Grecia	383	12–1570	45	10–190	29	1–310	28	1–193
Montenegro	246	78–480			29,3	7–166	23,7	9–74
Macedonia	456	0–699	36,9	11,5–92,7	23,4	0–31,7	25	19,8–37,9
Nueva Zelanda	370	<40–740			23	<4–56	29	<4–63

1.2.1.3 Actividad de radionucleidos naturales en suelos de América del Sur

En la bibliografía se encuentran datos de actividad de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K en muestras de suelo superficiales de Brasil (Malanca et al., 1996; Malanca y Gaidolfi, 1996), mientras que Araujo dos Santos Junior presentan datos de actividad de ^{40}K en muestras superficiales de suelos del mismo país (Araujo dos Santos Junior et al., 2005). Además, se han determinado actividades de ^{40}K , ^{232}Th y ^{226}Ra en muestras de suelo superficiales de distintos departamentos de Uruguay (Odino Moure, 2010). En Argentina, se encuentran perfiles de ^{40}K y ^{226}Ra en la provincia de San Luís, Argentina (Juri Ayub et al., 2008), además del intervalo de valores de actividad del ^{40}K publicados por la UNSCEAR (UNSCEAR 2000, 2008).

Brasil

Después de analizar 52 muestras de suelo de 0 a 20 cm de profundidad del estado de Rio Grande do Norte, Malanca et al., 1996 publican valores medios de actividad de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K de 29,2 Bq/kg, 47,8 Bq/kg y 704 Bq/kg, respectivamente. Los intervalos de actividad determinados fueron relativamente grandes, como puede verse en la Tabla 1.7.

Para Sertao se publican actividades de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K en dos muestras de suelo superficial (Malanca y Gaidolfi, 1996). Los valores para esta zona resultaron mayores a aquellas encontradas en Rio Grande do Norte (ver Tabla 1.7).

En el estado de Pernambuco Araujo dos Santos Junior et al., 2005 analizaron la actividad del ^{40}K en 78 muestras de suelo superficial. Encontraron una gran variabilidad en los resultados (ver Tabla 1.7), con las mayores actividades en la zona este de la región. El valor promedio fue de 1827 Bq/kg.

Tabla 1.7: Actividad natural el suelos de Brasil.

Lugar	^{226}Ra (Bq/kg)		^{232}Th (Bq/kg)		^{40}K (Bq/kg)	
	media	intervalo	media	intervalo	media	intervalo
Rio Grande do Norte	29,2	10–136,7	47,8	12-191	704	56-1972
Sertao1	43,0		123,0		1312	
Sertao2	44,0		111,0		1352	
Pernambuco					1827	541-3572

Uruguay

Se presentan datos de actividad de suelos superficiales (0 a 5 cm de profundidad) de cuatro departamentos de Uruguay (Odino Moure, 2010). La Tabla 1.8 muestra los valores publicados para ^{40}K , ^{226}Ra y ^{232}Th .

Tabla 1.8: Actividad natural en suelos superficiales de Uruguay.

Coordenadas	Departamento	^{40}K (Bq/kg)	^{226}Ra (Bq/kg)	^{232}Th (Bq/kg)
32° 26'S 54° 19'O	Cerro Largo	1054±100	19±2	75±7
34° 10'S 57° 41'W	Colonia	341±31	14±1	19±2
31° 18'S 57° 02'W	Salto	90±5	7,2±0,5	11±1
34° 20'S 56° 43'W	San José	440±40	23±2	51±5

Además, el mismo autor estudió la variación temporal de las actividades en el departamento de Colonia entre 2004 y 2009, los resultados se dan en la Tabla 1.9. En este trabajo no se especifica por qué en la variación de los resultados obtenidos.

Tabla 1.9: Variación temporal de actividad en suelos del departamento de Colonia, Uruguay.

Año	^{40}K (Bq/kg)	^{226}Ra (Bq/kg)	^{232}Th (Bq/kg)
2004	492±45	19±2	8,6±0,5
2005	560±51	22±2	36±31
2006	495±45	21±2	35±30
2007	255±21	7,7±0,5	9,4±0,5
2009	341±30	14±1	19±2

Argentina

La Tabla 1.10 y la Figura 1.1 presentan la actividad de ^{40}K y ^{226}Ra en suelos de la provincia de San Luis, Argentina (Jury Ayub et al., 2008). El intervalo de actividad publicado para el ^{226}Ra fue de 66 ± 1 Bq/kg a 73 ± 2 Bq/kg, sin variaciones significativas en profundidad, mientras que para el ^{40}K fue de 727 ± 5 Bq/kg a 748 ± 20 Bq/kg. Los autores asocian la tendencia de aumento de la actividad de este último radionucleido con la profundidad, en el suelo denominado aquí A2, a la presencia de una mayor biomasa de plantas respecto del denominado A1.

Tabla 1.10: actividad del ^{40}K y ^{226}Ra en suelos de la provincia de San Luis, Argentina.

A1			A2		
Profundidad (cm)	^{40}K (Bq/kg)	^{226}Ra (Bq/kg)	Profundidad (cm)	^{40}K (Bq/kg)	^{226}Ra (Bq/kg)
1,0	733±11	69±3	1,0	734±20	71±3
2,5	736±15	64±2	2,5	733±20	70±4
3,5	733±11	67±3	3,5	746±15	73±2
7,5	737±13	68±3	7,5	744±15	70±3
12,5	732±5	66±3	12,5	749±6	69±3
17,5	735±7	67±3	17,5	746±9	70±3
22,5	727±20	66±1	22,5	748±20	68±1

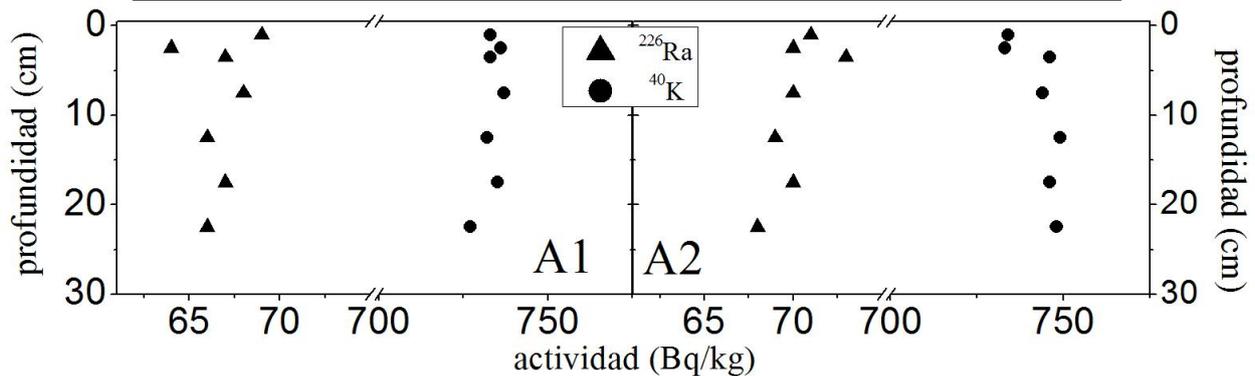


Figura 1.1: Perfiles de actividad de ^{40}K y ^{226}Ra en suelos de la provincia de San Luis, Argentina.

1.2.2 Radioactividad artificial

1.2.2.1 Origen

Luego de los bombardeos atómicos en Hiroshima y Nagasaki llevados a cabo durante 1945, países como Estados Unidos, Unión Soviética/Rusia, Francia, Inglaterra y China buscaron

convertirse en potencias nucleares. Para lograr su objetivo realizaron ensayos de explosiones de armas nucleares en distintas partes del mundo. Los ensayos realizados debajo de la superficie terrestre fueron los más numerosos, quedando prácticamente todo el material radioactivo confinado en la zona de ejecución, excepto en algunos casos donde realizaron liberaciones a la atmósfera. Por otro lado, los ensayos realizados en la superficie terrestre y la atmósfera liberaron al medio ambiente detritos radioactivos en forma de gases y partículas. Entre 1945 y 1980 se realizaron, en todo el mundo, 543 ensayos nucleares atmosféricos (Eisenbud y Gesell., 1997).

1.2.2.2 Ensayos nucleares atmosféricos: caracterización y ubicación

La Figura 1.2 muestra la localización de los sitios donde se realizaron los ensayos, distinguiendo entre aquellos ejecutados en los Hemisferios Norte y Sur, mientras que la Figura 1.3 muestra el número de ensayos atmosféricos realizados por año, distinguiendo aquellos realizados en el Hemisferio Sur (UNSCEAR, 2000).

La Unión Soviética, y China realizaron sus ensayos exclusivamente en el Hemisferio Norte, mientras que Inglaterra y Francia (excepto algunos pocos) lo hicieron en el Hemisferio Sur. Estados Unidos realizó ensayos en ambos hemisferios.

Francia comenzó a ganar experiencia en este tema participando de algunos ensayos hechos por Estados Unidos, hasta que en 1960 hizo su primer ensayo nuclear en Argelia. En 1962 comienzan a realizar sus pruebas nucleares en el Archipiélago de Taumotu, perteneciente a la Polinesia Francesa, en el Pacífico Sur, instalándose el *Centre d'Experimentations du Pacifique* (CEP) en los Atolones de Mururoa y Fangataufa. El 2 de julio de 1966 Francia realiza el primer ensayo atmosférico en este archipiélago y finaliza con los ensayos de este tipo el 14 de septiembre de 1974. En total en la zona realizó 41 ensayos atmosféricos, 37 en Mururoa y 4 en Fangataufa. En este sitio, el mayor aporte del campo de fisión fue en la estratósfera (UNSCEAR, 2000). El otro país que realizó ensayos de explosiones nucleares atmosféricos en el Hemisferio Sur fue Inglaterra, en Maralinga y las Islas Montebello, Emu, Malden y Christmas. En total llevó a cabo 21 ensayos atmosféricos, las pruebas fueron hechas entre 1952 y 1958. Estados Unidos realizó 3 ensayos en el océano Atlántico en 1958 y 24 en las Islas Christmas en 1962, donde se ejecutó el ensayo nuclear atmosférico con mayor campo del Hemisferio Sur. Además efectuó muchos otros en los Atolones de Bikini y Enewetok entre 1946 y 1958 (islas Marshall, aproximadamente 800 km al norte de la línea ecuatorial), inyectando detritos radioactivos en ambos hemisferios.



Figura 1.2: Localización de los sitios donde se llevaron a cabo los ensayos nucleares. Los círculos de diferentes colores hacen distinción entre los realizados en los Hemisferios Norte y Sur.

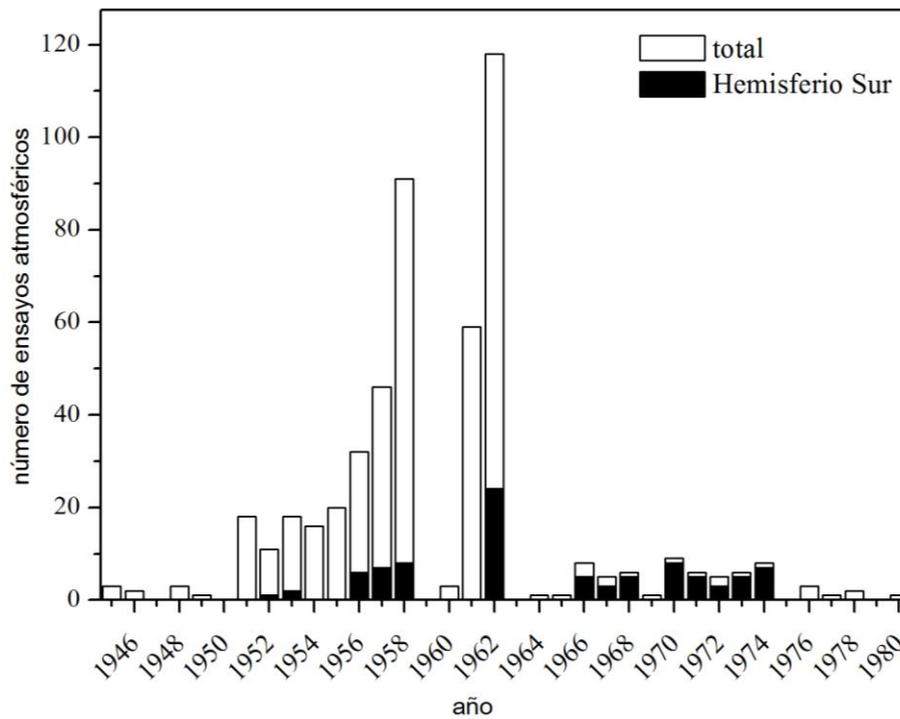


Figura 1.3: Número de ensayos atmosféricos realizados por año. Las barras blancas corresponden al número total, las negras al número de ensayos realizados en el Hemisferios Sur.

1.2.2.3 Radionucleidos originados en los ensayos nucleares atmosféricos

Al efectuarse la explosión nuclear se producen tres tipos de lluvia radioactiva: local, troposférica y global. Esta última está conformada por partículas que llegan a la estratósfera y se dispersan globalmente. Cuando se produce una detonación, 82% del material radioactivo estratosférico queda en el hemisferio de inyección (Eisenbud y Gesell, 1997).

Algunos de los radionucleidos más relevantes generados durante los ensayos son el ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr , ^{95}Zr , ^{131}I , ^{137}Cs , ^{131}Ce y ^{144}Ce , entre otros. El ^{90}Sr y el ^{137}Cs dan cuenta principalmente de la lluvia radioactiva global, ya que son elementos volátiles con vidas medias suficientemente largas. En consecuencia estos elementos radioactivos podrán difundir en la atmósfera antes de alcanzar a la superficie terrestre. El ^{90}Sr (vida media de 28,6 a) es un emisor β^- , convirtiéndose en ^{90}Y , también emisor β^- . El ^{137}Cs (vida media de 30,2 a) es un emisor β^- , su hijo, el $^{137\text{m}}\text{Am}$, con vida media de minutos emite un rayo γ característico de 661,62 keV (Lederer y Shirley, 1978).

1.2.2.4 Actividad de radionucleidos antropogénicos en suelos de América del Sur

En Argentina, Bujan et al., 2000, 2003, determinaron perfiles de actividad de ^{137}Cs en San Pedro, provincia de Buenos Aires, mientras que Juri Ayub et al., 2007, 2008 lo hicieron para la provincia de San Luís. En Brasil, se publicaron perfiles de actividad del mismo radionucleido en la región central del país (Correchel et al., 2005), en las regiones tropical, subtropical y ecuatorial (Handl et al., 2008) y en la región de Londrina, estado de Paraná (Andrello et al. 2007). Por su parte se determinaron perfiles de ^{137}Cs en regiones agrícolas y de granjas en Chile (Schuller et al., 1997, 2002, 2004). Además, en la bibliografía se encuentran datos de actividades de este radionucleido en muestras de suelos superficiales de Uruguay (Odino Moure, 2010).

Depósito de ^{137}Cs y ^{90}Sr

Según propone UNSCEAR (UNSCEAR 2000, 2008), los radionucleidos provenientes de los ensayos nucleares atmosféricos deberían estar distribuidos en el planeta en bandas latitudinales debido a la circulación global de los vientos. Así, este organismo presenta valores de densidad de depósito integrada de ^{90}Sr obteniéndose para la banda correspondiente a la ciudad de La Plata (30-40° S) un valor de 758 Bq/m² (UNSCEAR, 2000, 2008).

Aun cuando no existen datos del depósito de ^{137}Cs tan detalladas como los correspondientes al ^{90}Sr , hay evidencia experimental de que la relación de las actividades depositadas de ^{137}Cs y ^{90}Sr permanece constante e igual a 1,5 (USCEAR, 2000). Así, pueden utilizarse los datos de depósito de ^{90}Sr para estimar los valores esperados para el ^{137}Cs . A partir de los datos de UNSCEAR para la

banda latitudinal correspondiente a la zona de La Plata se estima una densidad de depósito integrada de ^{137}Cs de 1137 Bq/m^2 .

Estados Unidos e Inglaterra realizaron un monitoreo del depósito anual de ^{90}Sr . Los resultados obtenidos en sitios particulares fueron promediados por banda latitudinal y multiplicados por el área de las bandas, para así obtener datos de depósito anual por hemisferio. La Figura 1.4 muestra los resultados correspondientes al Hemisferio Sur (UNSCEAR, 2000). Como puede verse el máximo depósito se observa entre los años 1963 a 1965.

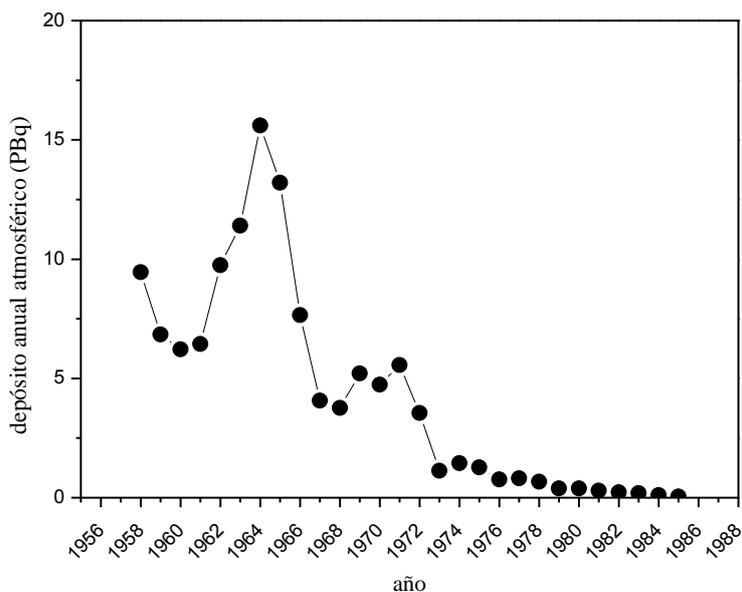


Figura 1.4: Depósito anual de ^{90}Sr en el Hemisferio Sur (UNSCEAR 2000).

En la ciudad de Buenos Aires Ciallela et al., 2003 midieron el depósito de ^{137}Cs y ^{90}Sr desde 1964 (Figura 1.5). Como puede verse, el máximo depósito se produjo entre 1964 y 1966 coincidente con el resultado publicado por UNSCEAR. De estos datos (y considerando un depósito estimado de ^{137}Cs para el periodo que abarca desde 1956 a 1964) se determina un depósito acumulado de ^{137}Cs de $1058 \text{ Bq/m}^2 \pm 32 \text{ Bq/m}^2$, acorde con lo estimado a partir del depósito de ^{90}Sr publicado por la UNSCEAR (UNSCEAR, 2000, 2008).

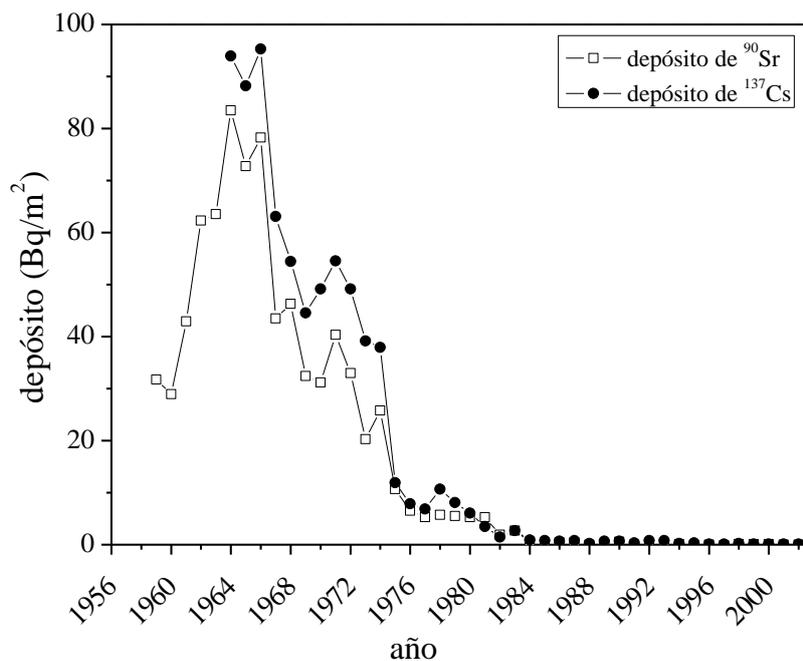


Figura 1.5: Depósito de ⁹⁰Sr y ¹³⁷Cs en la ciudad de Buenos Aires (Cialella et al., 2003).

1.2.2.5 Actividad superficial y perfiles de ¹³⁷Cs

A continuación se presentan los resultados obtenidos para la actividad del ¹³⁷Cs en diferentes estudios de suelos de países de América del Sur.

Brasil

La Figura 1.6 muestra perfiles de ¹³⁷Cs determinados en suelos en el centro de Brasil (Correchel et al., 2005), llamados aquí BS1, BS2, BS3 y BS4. En todos los casos, las actividades máximas fueron observadas en superficie y las diferencias entre los perfiles fueron atribuidas a las distintas características químicas, físicas, mineralógicas y biológicas de los suelos. En la Tabla 3.5 se muestran los inventarios calculados para cada uno de los perfiles, obteniéndose un valor medio de 265 Bq/m². A fin de poder comparar los inventarios publicados (IP) en América del Sur, los valores obtenidos se han corregido, por el decaimiento radioactivo, para el año 1965 dado que los máximos depósitos se han determinado entre 1964 y 1966. Así, el inventario medio corregido para esta región es de 650 Bq/m² (ver Tabla 1.11).

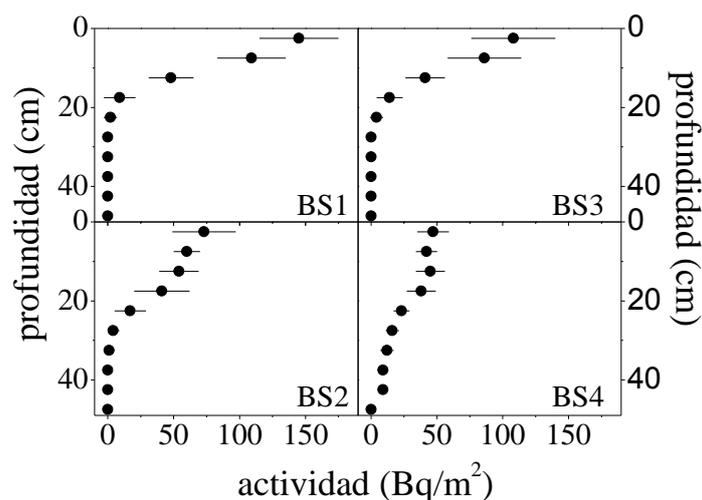


Figura 1.6: Perfiles de ^{137}Cs determinados en la zona central de Brasil (Correchel et al., 2005).

Handl et al., 2008 estudiaron la distribución y el comportamiento del ^{137}Cs en suelos no perturbados tropicales, subtropicales y ecuatoriales (BS5-BS25 en Tabla 1.11). Los perfiles de actividad típicos encontrados se muestra en la Figura 1.7. Los autores determinan la mayor actividad entre los 10-15 cm de profundidad. En cuanto a los inventarios, en la región ecuatorial determinaron valores extremadamente bajos (BS7 y BS8 en Tabla 1.11), mientras que en la región sur del país encontraron inventarios considerablemente mayores. Asimismo, no observaron correlación entre la altitud y el depósito de ^{137}Cs .

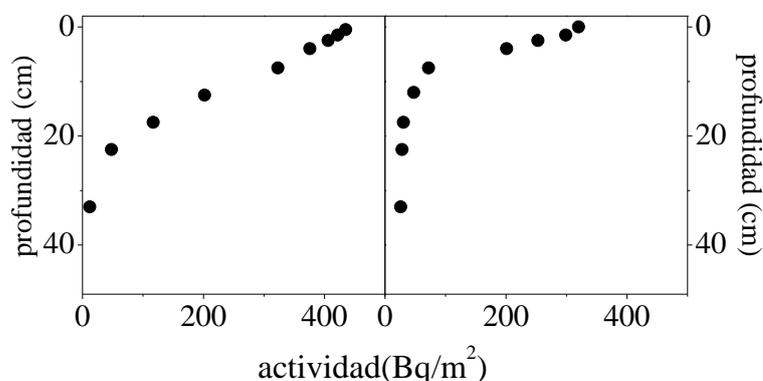


Figura 1.7: Perfiles de ^{137}Cs representativos de la zonas tropical, subtropical y ecuatorial de Brasil tomados de la referencia de Handl et al., 2008.

Andrello et al., 2007 determinaron tres perfiles de ^{137}Cs (BS26-28, Tabla 1.11) en la ciudad de Londrina, estado de Paraná. Los inventarios establecidos se muestran en la Tabla 1.11. Andrello et al. 2009, realizaron un estudio para observar la variabilidad espacial en el inventario de ^{137}Cs en suelos de diferentes regiones. Los autores determinaron que el inventario cambia con la latitud y la altura sobre el nivel del mar, encontrando en la región cercana al ecuador los depósitos más pequeños.

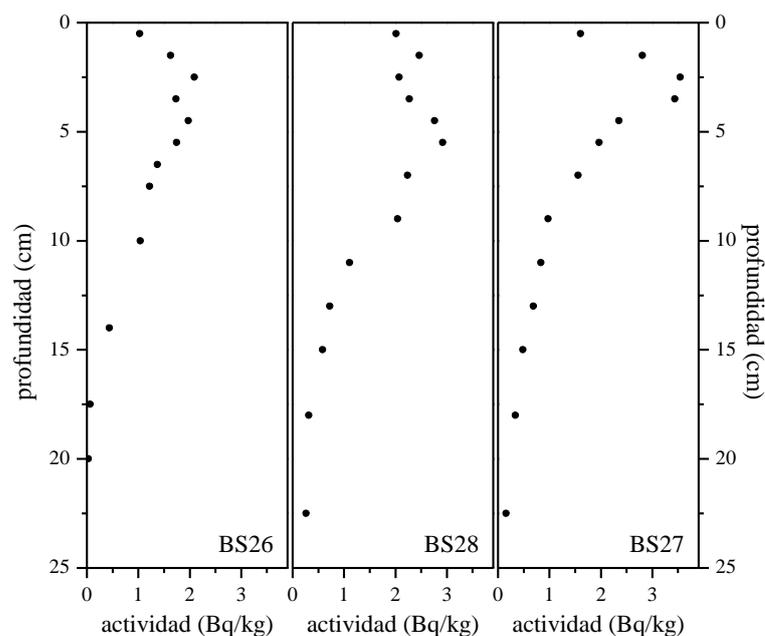


Figura 1.8: Perfiles de ^{137}Cs en la ciudad de Londrina, Paraná (BS26-BS28) (Andrello et al., 2007).

Tabla 1.11: Inventarios publicados (IP) y corregidos para 1965 (IC_{1965}) para Brasil junto con la tasa de precipitación anual media (TPA).

Suelo	Posición geográfica	IP (Bq/m^2)	IC_{1965} (Bq/m^2)	TPA (mm)
BS1	22°42,00' S; 47°38,00' O	314	771±34	1253
BS2	22°47,00' S; 47°19,00' O	250	614±77	1317
BS3	22°09,00' S; 47°01,00' O	253	621±46	1400
BS4	22°40,00' S; 48°10,00' O	242	594±37	1100
BS5	01°57,00' S; 54°12,00' O	385±110	945±110	2100
BS6	03°08,00' S; 60°01,00' O	0,36±0,1	0,8±0,1	2000-2250
BS7	03°08,00' S; 60°01,00' O	2,3±0,7	5,15±0,07	2000-2250
BS8	08°10,00' S; 34°54,00' O	44±13	99±13	1600
BS9	09°26,00' S; 38°08,00' O	37±11	83±11	800
BS10	09°26,00' S; 38°08,00' O	84±27	188±27	800
BS11	15°58,00' S; 47°59,00' O	249±71	558±71	1750
BS12	16°42,00' S; 47°40,00' O	392±112	654±212	1750
BS13	19°29,00' S; 57°25,00' O	7,2±2,0	16±2	1500
BS14	20°43,00' S; 54°31,00' O	755±216	1691±216	1500
BS15	20°22,00' S; 43°24,00' O	266±143	596±143	1700
BS16	20°21,00' S; 43°29,00' O	500±76	1120±76	1700
BS17	22°20,00' S; 43°37,00' O	595±79	1333±79	1700
BS18	22°30,00' S; 44°30,00' O	214±61	479±61	1700
BS19	22°20,00' S; 44°40,00' O	1560±447	3494±447	2400
BS20	23°10,00' S; 44°11,00' O	628±180	1407±180	2200
BS21	23°07,00' S; 44°10,00' O	605±173	1355±173	2200
BS22	25°17,00' S; 48°55,00' O	614±176	1375±176	1500
BS23	26°39,00' S; 48°41,00' O	143±41	320±41	1300
BS24	29°21,00' S; 50°51,00' O	1620±463	3629±463	2000
BS25	30°05,00' S; 51°36,00' O	600±172	1344±172	1600
BS26	23°16,00' S; 51°17,00' O	241	552	1615
BS27	23°16,00' S; 51°17,00' O	338	774	1615
BS28	23°16,00' S; 51°17,00' O	325	745	1615

Chile

Schuller et al., 1997 determinaron perfiles e inventarios de ^{137}Cs en 4 suelos de uso agrícola de la región sur de Chile (CS1, CS2, CS3 y CS4). Los inventarios publicados se muestran en la Tabla 3.6, mientras que los perfiles en la Figura 1.9. Los autores observaron una relación entre el inventario y la tasa de precipitación anual.

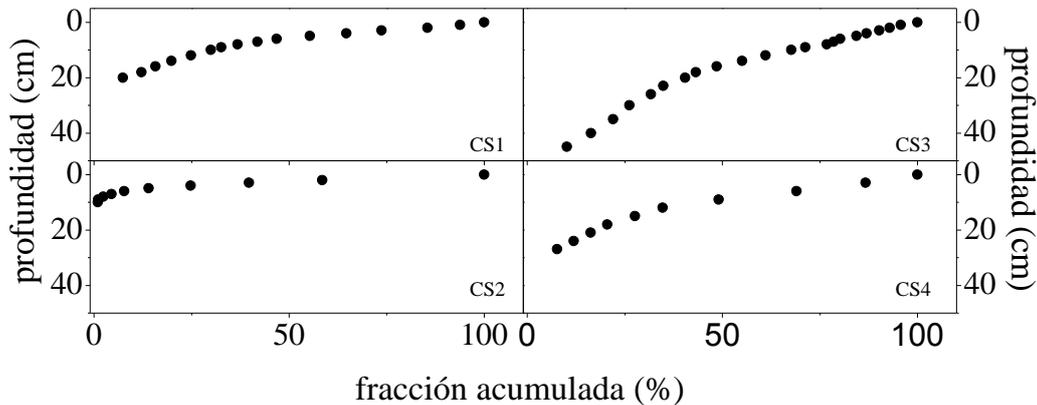


Figura 1.9: Perfiles de ^{137}Cs en suelos agrícolas del sur de Chile (Schuller et al., 1997).

Por otro lado se publicaron datos para suelos de diferentes regiones del sur del país, contemplando 3 tipos de suelos (Schuller et al, 2002), como se ve en la Figura 1.10. Los perfiles de ^{137}Cs no presentaron un patrón sistemático, pero siguen una distribución exponencial decreciente. Los inventarios publicados variaron de 450 a 5410 Bq/m^2 , correlacionados con la tasa de precipitación anual.

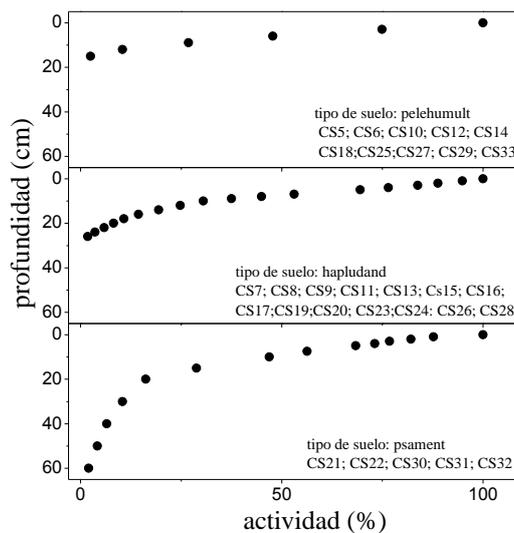


Figura 1.10: Perfiles de ^{137}Cs en Chile según el estudio realizado por Schuller et al., 2002.

Schuller et al., 2004 determinaron perfiles de actividad de ^{137}Cs en suelos de la región sur de la Patagonia chilena, los resultados son mostrados en la Figura 1.11. Los inventarios publicados para esta región variaron entre 222 Bq/m^2 a 858 Bq/m^2 , encontrándose correlación con la tasa de precipitación anual, pero no así con las bandas latitudinales.

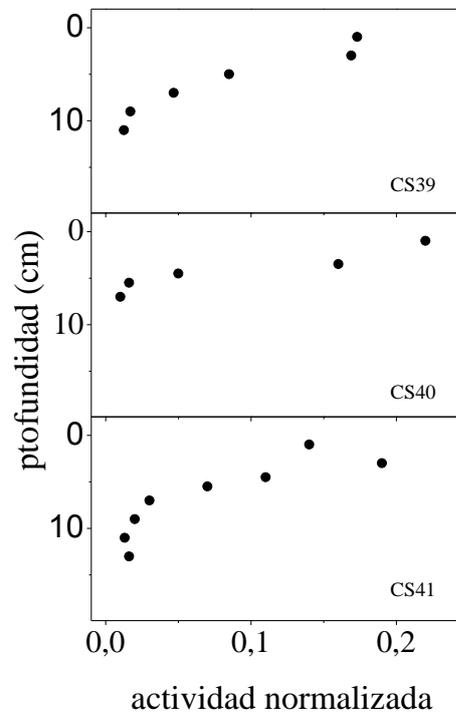


Figura 1.11: Perfiles de ^{137}Cs en la región patagónica de Chile (Schuller et al., 2004).

Tabla 1.12: Inventarios Publicado (IP) y corregidos para 1965 (IC₁₉₆₅) para Chile junto con la tasa de precipitación anual (TPA).

suelo	posición geográfica	IP (Bq/m ²)	IC ₁₉₆₅ (Bq/m ²)	TPA (mm)
CS1	39°44,50' S; 73°22,80' O	1210	2202	2100
CS2	38°41,50' S; 72°53,00' O	790	1438	750
CS3	39°41,30' S; 72°57,10' O	1550	2821	2300
CS4	40°23,00' S; 72°57,50' O	780	1420	1300
CS5		730	1329	750
CS6		500	910	970
CS7		480	874	1100
CS8		450	819	1150
CS9		610	110	1200
CS10		620	1128	1250
CS11		710	1292	1300
CS12		820	1492	1300
CS13		760	1565	1390
CS14		640	1165	1500
CS15		790	1438	1550
CS16		830	1511	1590
CS17		491	892	1660
CS18		1110	2002	1800
CS19		680	1238	1800
CS20		1120	2038	1800
CS21		1720	3130	1950
CS22		940	1711	2000
CS23		920	1674	2040
CS24		1160	2111	2100
CS25		1110	2020	2100
CS26		1420	2584	2300
CS27		1590	2894	2300
CS28		1040	1893	2360
CS29		2150	3913	2500
CS30		1440	2621	2500
CS31		4970	9045	3500
CS32		2550	4641	3700
CS33		5410	9846	4000
CS34	50°53,00' S; 72°40,00' O	596±89	1162±89	500
CS35	51°08,00' S; 73°10,00' O	751±113	1464±113	700
CS36	51°10,00' S; 73°05,00' O	747±112	1457±112	700
CS37	51°12,00' S; 73°00,00' O	684±103	1334±103	700
CS38	52°20,00' S; 68°25,00' O	323±48	630±48	248
CS39	52°16,00' S; 68°50,00' O	332±50	662±50	265
CS40	52°35,00' S; 69°50,00' O	270±41	538±41	280
CS41	52°38,00' S; 70°15,00' O	222±33	443±33	300
CS42	52°40,00' S; 70°50,00' O	280±42	559±42	340
CS43	52°25,00' S; 71°25,00' O	263±39	525±39	374
CS44	52°35,00' S; 71°33,00' O	289±43	577±43	450
CS45	51°55,00' S; 72°00,00' O	408±61	814±61	460
CS46	52°35,00' S; 71°42,00' O	508±76	1014±76	465
CS47	56°36,00' S; 70°50,00' O	858±29	1712±129	780

Uruguay y Venezuela

En Uruguay se determinaron actividades de ^{137}Cs en muestras superficiales de distintos departamentos del país (Tabla 1.13) (Odino Moure, 2010).

Tabla 1.13: Actividad de ^{137}Cs en suelos Uruguayos.

Departamento	^{137}Cs (Bq/kg)
Cerro Largo	2,1±0,5
Colonia	2,2±0,5
Salto	<L _D
San José	3,2±0,5

Además Odino Moure, 2010 estudió la variación temporal de las actividades en el departamento de Colonia entre 2004 y 2009, los resultados se resumen en la Tabla 1.14. Al igual que para las actividades naturales, los autores no especifican el porqué de las variaciones en la actividad del ^{137}Cs en las muestras analizadas.

Tabla 1.14: Variación temporal de la actividad de ^{137}Cs en el departamento de Colonia, Uruguay.

Año	^{137}Cs (Bq/kg)
2004	2,3±0,5
2005	1,8±0,2
2006	1,2±0,2
2007	1,7±0,2
2009	2,2±0,5

Argentina

Los estudios realizados por Bujan en la zona de San Pedro, provincia de Buenos Aires fueron realizados hasta 90 cm de profundidad, tomando capas de 10 cm de espesor (Bujan et al., 2000, 2003). No se detectó actividad de ^{137}Cs para profundidades mayores que 30 cm. Como se ve en la Figura 1.12, la máxima actividad fue determinada en superficie. El inventario local determinado para esta zona fue de 1108 Bq/m², en acuerdo con lo estimado por UNSCEAR y con datos en la Ciudad Autónoma de Buenos Aires (UNSCEAR 2000, 2008, Cialella et al., 2003).

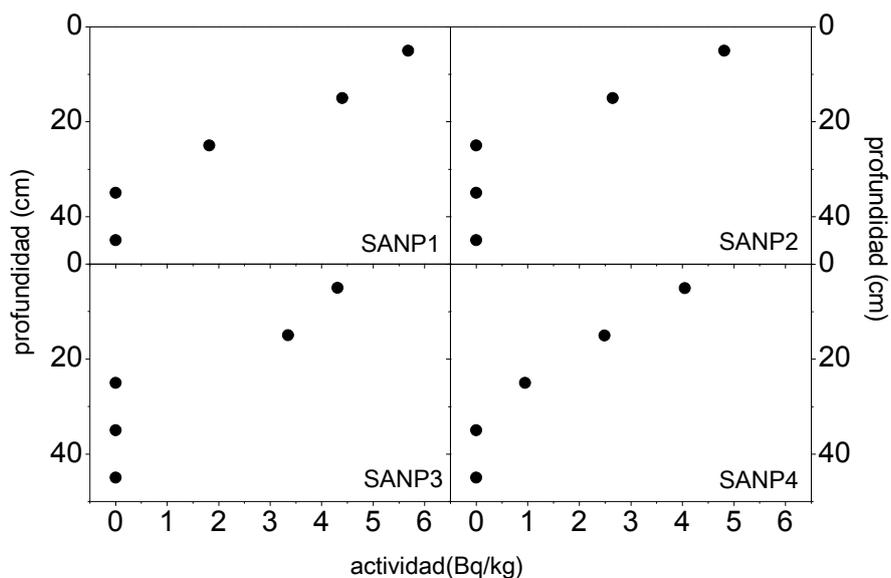


Figura 1.12: Perfiles de ^{137}Cs en San Pedro, provincia de Buenos Aires (Bujan et al., 2000, 2003).

Los perfiles de ^{137}Cs establecidos en la provincia de San Lu s, Argentina, fueron determinados hasta 25 cm de profundidad (Figura 1.13) (Juri Ayub et al., 2007; Juri Ayub et al., 2008). Los inventarios para esta regi n se presentan en la Tabla 1.15. Como puede verse, los perfiles de actividad presentan una forma del tipo gaussiana, con el m ximo de actividad alrededor de los 10 cm de profundidad.

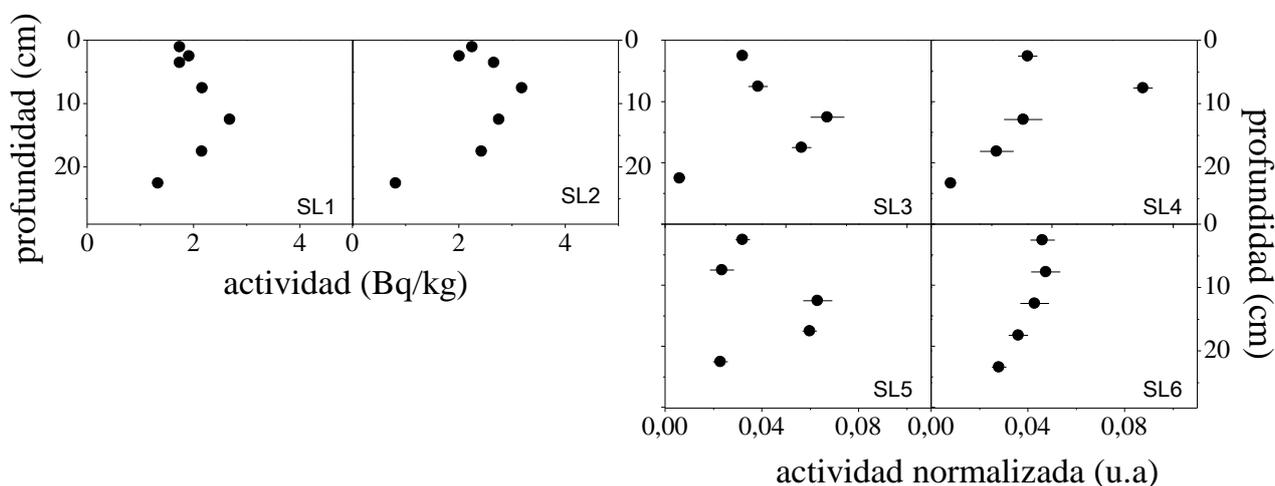


Figura 1.13: Perfiles de ^{137}Cs en suelos de San Lu s seg n lo publicado por Juri Ayub et al., 2007, 2008.

Tabla 1.15: Inventarios Publicado (IP) y corregidos para 1965 (IC₁₉₆₅) para Chile junto con la tasa de precipitación anual (TPA).

Suelo	Posición geográfica	IP (Bq/m ²)	IC ₁₉₆₅ (Bq/m ²)	TPA (mm)
SANP1	33°50,00'S, 59°52,00'O	1488	2512	1069
SANP2	33°50,00'S, 59°52,00'O	933	2041	1069
SANP3	33°50,00'S, 59°52,00'O	1074	2350	1069
SANP4	33°50,00'S, 59°52,00'O	937	2050	1069
SL1	33°40,17'S, 65°23,45'O	560	1407	640
SL2	33°39,93'S, 65°23,27'O	520	1306	640
SL3	33°40,00'S, 65°23,00'O	510	1281	640
SL4	33°40,00'S, 65°23,00'O	640	1608	640
SL5	33°40,00'S, 65°23,00'O	730	1834	640
SL6	33°40,00'S, 65°23,00'O	500	1256	640
SL7	33°40,00'S, 65°23,00'O	555	1394	640
SL8	33°40,00'S, 65°23,00'O	290	729	640
SL9	33°40,00'S, 65°23,00'O	330	829	640

De la información disponible en la literatura acerca de los valores de radioactividad en suelos de América del Sur puede concluirse, como una primera observación, que la información disponible es escasa y se requieren de más estudios radiológicos de los suelos de la región.

En cuanto a la radioactividad natural se puede mencionar la gran variabilidad de la actividad de los radionucleidos analizados en los suelos de Brasil, encontrándose valores significativamente menores y mayores que las actividades determinadas en suelos de otros países sudamericanos. En Uruguay, se observa una variación temporal importante en muestras de suelo superficial, aunque los autores no hacen mención a las posibles causas de este hecho. En lo que se refiere al ¹³⁷Cs, se observan variaciones significativas en los inventarios del radionucleido y en la forma de los perfiles de actividad en la columna de suelo en los diferentes estudios realizados. La mayoría de los autores atribuyen la diferencia en los perfiles a las distintas propiedades fisicoquímicas de los suelos y/o a procesos de erosión que redistribuyen el ¹³⁷Cs en el ambiente.

El análisis exhaustivo de los datos presentados será desarrollado en el Capítulo 5 conjuntamente con los datos obtenidos en este trabajo.

1.3 ¹³⁷Cs en el suelo

Cuando un contaminante ingresa al suelo se deben evaluar los mecanismos por los cuales es transportado, transformado, acumulado y/o perdido en el medio. Dentro de los procesos de transporte se pueden mencionar la difusión, la convección, la dispersión hidrodinámica y la bioturbación, mientras que puede ser transformado por una gran variedad de procesos físicos, químicos y biológicos. Además, puede ser acumulado o perdido por volatilización, infiltración, fijación, entre

otros. Estos procesos, competitivos entre sí, determinarán el camino del contaminante en el suelo (McKone, 2010) y así, indirectamente, el potencial daño al ser humano. En particular, la Figura 1.14 presenta los más relevantes que puede experimentar el ^{137}Cs en el suelo.

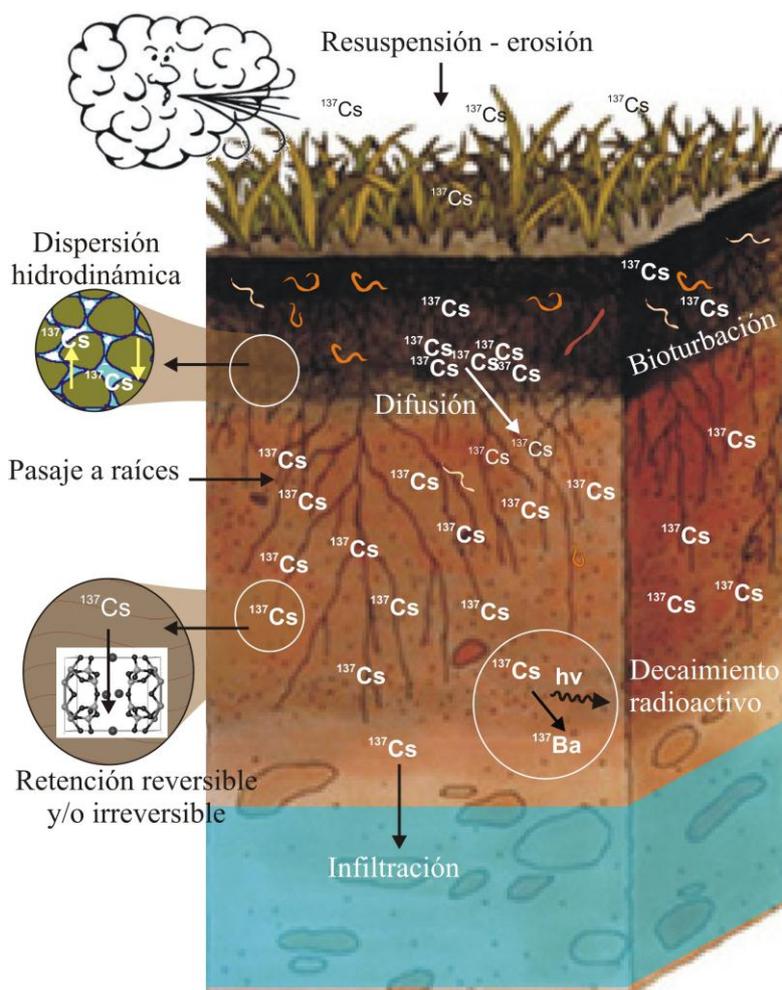


Figura 1.14: Posibles mecanismos de transporte, transformación, acumulación o pérdida del ^{137}Cs en el suelo.

1.3.1 Interacción con los componentes del suelo

Dentro de los parámetros que afectan el proceso de sorción del ^{137}Cs en suelos se pueden mencionar la clase textural y composición mineralógica, su concentración del radionucleido en la fase líquida, el contenido de materia orgánica y el pH, entre otros (Cornell, 1993, Giannakopoulou et al., 2007, Stauton et al., 2002).

1.3.1.1 Minerales

Existe una gran diversidad de trabajos donde se estudia la adsorción del ^{137}Cs en minerales en condiciones de laboratorio (Sawhney, 1964, Sawhney, 1970, Sawhney, 1972, Cremers et al., 1988, Catalette et al., 1998; Bellenber y Stauton, 2008, Singh et al., 2009). Se desprende de los trabajos

publicados que su adsorción específica, para concentraciones traza, está directamente relacionada con la estructura colapsada del grupo mineral de las micas, siendo el mineral más estudiado la illita (Gaudette et al., 1966, Sawhney 1972, Brouwer et al., 1983; Cornell 1993, Rajec et al 1999). En este mineral existen distintos tipos de sitios de adsorción: los ubicados en los bordes erosionados (sitios FES, del inglés *Fragde Edge Sites*) y los sitios de intercambio regular o planar (sitios RES, del inglés *Regular Exchange Sites*) (Cremers et al., 1988), como se muestra en la Figura 1.15. La adsorción en los sitios RES no es selectiva, por lo que es proporcional a la concentración del radionucleido en la solución del suelo. Así, a concentraciones relativamente bajas estos sitios no participan en la adsorción (Brouwer et al., 1983). Por otro lado, los sitios FES se caracterizan por adsorber al ^{137}Cs en forma selectiva e irreversible y son los responsables de la adsorción del radionucleido en concentraciones traza (Sawhney, 1972, Poinssot et al., 1999). Los sitios FES se forman cuando las micas sufren algún tipo de desgaste que provoca cambios en la composición. Dentro de los cambios se incluyen la liberación de iones estructurales OH^- expuestos al reemplazo de K o a la sorción de H^+ , la oxidación del Fe en la capa octaédrica o la pérdida de cationes divalentes (Newman y Brown, 1966). Para suelos con bajo contenido de materia orgánica, los sitios FES constituyen aproximadamente un 1% del total de la capacidad de intercambio catiónico (CEC).

El ^{137}Cs no puede penetrar en las intercapas, pero puede reemplazar al K^+ que se encuentra en los bordes erosionados. Cuando entra a estos sitios forma uniones polares con el oxígeno estructural del tetraedro silicio/oxígeno, acoplado las capas internas y causando el colapso de los bordes. Así, el Cs queda retenido en el mineral y es muy difícil que sea reemplazado por otro catión. Este proceso se produce debido a la baja energía de hidratación del cesio. Cuando las concentraciones de Cs en la solución son lo suficientemente grandes, los sitios FES se saturan y la adsorción se hace importante en otros minerales, como la vermiculita y la montmorillonita.

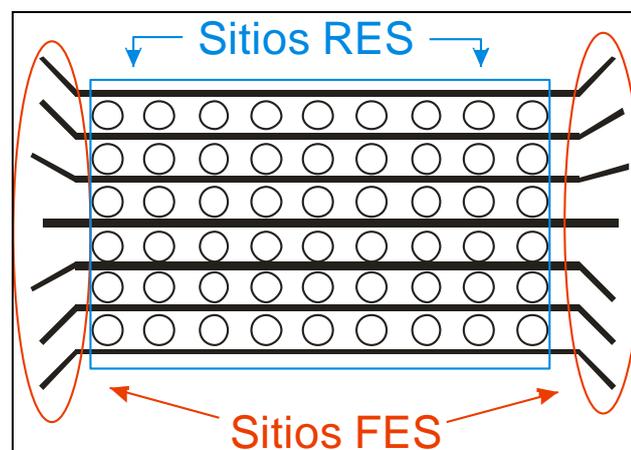


Figura 1.15: Localización de los sitios de adsorción FES (borde del cristal) y RES (círculos abiertos) en la illita.

Cuando el ^{137}Cs se encuentra en concentraciones relativamente altas en la solución del suelo, las esmectitas son los principales minerales adsorbentes (Vejsada et al., 2005). En primera instancia adsorbe rápidamente al Cs en las capas más externas y este luego difunde lentamente dentro de las intercapas. Una fracción del Cs queda retenida fuertemente dentro del mineral, con lo que su intercambio puede ser un proceso muy lento. En la montmorillonita todos los sitios de intercambio tienen la misma probabilidad de ser ocupados, es decir, no posee sitios de adsorción selectivos y el proceso de adsorción es un simple proceso de intercambio iónico (Cornell, 1993). La adsorción en la montmorillonita es más rápida que en la illita (Bellenber y Stauton, 2008). En la montmorillonita se observa un aumento en la adsorción cuando el pH aumenta desde 1 hasta 3, para luego permanecer constante (Wu et al., 2009).

Otro de los minerales de interés en la adsorción del cesio en el suelo es la vermiculita, formada por la erosión de la biotita, mineral con una capacidad de expansión limitada. La adsorción del Cs por parte de la vermiculita es similar al de la illita (Sawhney, 1964, Sawhney, 1970; Vejsada et al., 2005, Staunton et al., 2002).

Por otro lado, en el caso de la magnetita la adsorción del Cs se considera como un proceso simple de intercambio iónico (Singht et al., 2009). Cuando la magnetita presenta impurezas de silicatos la adsorción se vuelve apreciable (Marmier et al., 1999, Marmier y Fromage, 2000). Catalette et al., 1998 estudian la adsorción de Cs en magnetita (con 96% de pureza) determinando un valor cercano al 40%, independientemente del pH de la solución (para valores entre 3 y 9). Contrariamente Singht et al., 2009 publican que la adsorción en magnetita es independiente del pH sólo cuando este es menor a 6 (donde la carga de la magnetita es positiva) pero a valores de pH mayores la adsorción aumenta con el aumento de pH (entre 6 y 11). Contrariamente, para el caso de magnetita natural se publica una adsorción máxima para pH cercano a 7, disminuyendo con el aumento de pH (Todorovic et al., 1992).

Con respecto a la hematita, se ha publicado una adsorción prácticamente nula para un rango de pH entre 3,3 y 8 en el caso de una hematita natural (Todorovic et al., 1992), aunque en otro trabajo se informa un aumento de la adsorción con el aumento de pH (Cornell, 1993).

Un mineral muy común en los suelos es el cuarzo. Los sitios de intercambio que presenta están en los grupos hidroxilos superficiales y su cantidad es relativamente baja, así la adsorción de Cs por parte del cuarzo es despreciable para un amplio rango de pH (Vejsada et al., 2005, Bellenger y Staunton., 2008).

En particular, el cesio en el suelo es encontrado como Cs^+ (Cornell, 1993) y, dado que no hidroliza ni forma complejos fácilmente, el pH sólo afecta las propiedades de adsorción del Cs por parte de los minerales.

1.3.1.2 Materia orgánica

La adsorción del ^{137}Cs en la materia orgánica es altamente no específica (Dumat y Stauton, 1999, Bellenger y Staunton, 2008), aunque podría jugar un rol indirecto en la adsorción de Cs en minerales. Bellenger y Staunton, 2008 encontraron que el efecto de disminución en la adsorción del Cs en minerales por la presencia de capas orgánicas era mayor para la illita que para la montmorillonita y la caolinita. La materia orgánica puede producir un efecto indirecto en la adsorción del Cs en la illita, ya que su presencia cerca de los sitios FES podría evitar que la estructura colapse, impidiendo que el Cs quede retenido (Dumat y Stauton, 1999, Bellenger y Staunton, 2008).

1.3.1.3 Presencia de iones

El entorno iónico afecta la adsorción de microcantidades de Cs en suelos (Sawhney, 1964). Los iones más importantes que compiten con el Cs por los sitios de adsorción de los minerales son el Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} y NH_4^+ (Cornell, 1993, Vejsada et al., 2005, Wu et al., 2009). Para las micas, el K^+ es quien compite más fuertemente con el Cs por efectos estéricos y por su energía de hidratación baja, siguiéndole el Ca^{2+} y luego el Na^+ (Vejsada et al., 2005). Sawhney, 1964 encontró una mayor adsorción de microcantidades de Cs en micas saturadas con Ca^{2+} que en las saturadas con K^+ o NH_4^+ , mientras que para la montmorillonita y la caolinita obtuvo el efecto contrario. Así, en la adsorción de microcantidades de Cs sobre las micas y la vermiculita, los iones más competitivos son aquellos que presentan tamaño, carga y energía de hidratación similares a las del Cs. En las arcillas expandibles se observa el efecto contrario que en las micas y vermiculita (Sawhney, 1964). Wu et al., 2009 han publicado que la presencia de Fe^{3+} y el Mg^{2+} tienen una influencia mucho menor en la adsorción.

1.3.2 Procesos de transporte, transformación y modelado

El modelado del transporte del ^{137}Cs en suelos no es descripto de una manera unívoca. Más aun en la bibliografía se pueden encontrar dos tipos de modelos para describir la migración del ^{137}Cs en suelos: los compartimentales y los analíticos.

Los modelos compartimentales consideran al suelo como formado por una serie de capas horizontales, o compartimentos, conectadas entre sí (Schuller et al., 1997, Kirchner, 1998). La información que provee los ajustes con este modelo es la tasa de transferencia del radionucleido entre capas adyacentes y el tiempo de residencia medio del mismo en cada capa. Este tipo de modelo tiene una naturaleza extremadamente macroscópica, sus limitaciones son varias y sólo pueden utilizarse

para hacer predicciones del comportamiento a largo plazo luego de una validación muy cuidadosa (Kirchner, 1998).

Los modelos analíticos utilizan una expresión matemática continua para estimar la concentración del radionucleido en el suelo como una función de la profundidad. Dentro de este tipo de modelos están los que consideran los procesos fisicoquímicos que gobiernan el proceso (Bossey y Kirchner, 2004, Bunzl, 2002, Krstić et al., 2004, Likar et al., 2001, Toso y Velasco, 2001) y los que solamente los ajustan matemáticamente, sin mayores consideraciones (Blagoeva y Zikovsky, 1995, Al-Masri, 2006).

A continuación se aborda en detalle el tema de los modelos analíticos que consideran los posibles procesos que afectan la migración del ^{137}Cs , ya que son los utilizados en este trabajo para ajustar los perfiles de actividad del radionucleido.

La ecuación diferencial que describe la velocidad de cambio de la concentración de los radionucleidos tomando en cuenta los procesos de difusión, convección, fijación, dispersión hidrodinámica y decaimiento radioactivo viene dada por:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial f(x,t)}{\partial t} = - \underbrace{v_{eff} \frac{\partial f(x,t)}{\partial x}}_{(1)} + \underbrace{D_{eff} \frac{\partial^2 f(x,t)}{\partial^2 x}}_{(2)} - \underbrace{\lambda f(x,t)}_{(3)} - \underbrace{k_{eff} f(x,t)}_{(4)} \quad (a) \\ \frac{\partial b(x,t)}{\partial t} = km(x,t) - \lambda b(x,t) = k_{eff} f(x,t) - \lambda b(x,t) \quad (b) \end{array} \right. \quad (1.1)$$

donde x representa la profundidad y t el tiempo transcurrido desde el depósito. La concentración total de ^{137}Cs , $C(x,t)$, está formada por tres componentes, la concentración presente en la fase líquida del suelo, $m(x,t)$, la concentración adsorbida en forma reversible en los minerales del medio difusor, $s(x,t)$, y aquella fracción que queda adsorbida en forma irreversible en la matriz del suelo, $b(x,t)$:

$$C(x,t) = m(x,t) + s(x,t) + b(x,t) = f(x,t) + b(x,t) \quad (1.2)$$

donde $f(x,t) = m(x,t) + s(x,t)$ representa la fracción libre de moverse en el suelo. D_{eff} , v_{eff} y k_{eff} representan el coeficiente de difusión molecular efectivo (considerando también el proceso de dispersión hidrodinámica), la velocidad de convección efectiva y la tasa de transferencia efectiva del estado móvil al ligado en forma irreversible, respectivamente. Con:

$$D_{eff} = \frac{D_d}{1+R}; v_{eff} = \frac{v}{1+R}; k_{eff} = \frac{k}{1+R} \quad (1.3)$$

donde D_d , v y k son el coeficiente de difusión-dispersión, la velocidad de convección y la tasa de transferencia del estado móvil al ligado en forma irreversible, respectivamente. Por su parte, R , el llamado factor de retardo viene dado por:

$$R = K_D \frac{\delta}{\varepsilon} \quad (1.4)$$

Los parámetros K_D , δ y ε representan el coeficiente de partición, la densidad del suelo y la porosidad del medio difusor, respectivamente.

El flujo de agua del suelo lleva consigo un flujo de soluto que es proporcional a la concentración del mismo. Para estimar la distancia recorrida del soluto por unidad de tiempo se debe considerar la velocidad promedio aparente v , donde se desprecia el camino tortuoso causado por la presencia de los poros en el suelo (Hillel, 1998). Debido a la convección, cada molécula de soluto se moverá una distancia $v \delta t$ en la dirección del flujo. El proceso de convección es tenido en cuenta en el término (1) de la ecuación (1.1) (a).

Cuando un elemento no está distribuido uniformemente en el medio en el cual está inmerso existen gradientes de concentración que hacen que se mueva de zonas de mayor a menor concentración, proceso que es llamado difusión. Por su parte, el movimiento de cualquier solución heterogénea en un medio poroso también experimenta la dispersión hidrodinámica, que, si bien es de naturaleza distinta a la difusión, tiende a producir la misma tendencia. La dispersión hidrodinámica proviene de la no uniformidad microscópica de la velocidad del flujo en los poros del suelo, dado que el agua se mueve más rápido en los poros más grandes que en los más chicos. Matemáticamente, este proceso puede ser considerado conjuntamente con la difusión, mediante la utilización del coeficiente de difusión-dispersión (Hillel, 1998). Ambos procesos son considerados conjuntamente en el término (2) de la ecuación (1.1) (a), teniendo en cuenta la ecuación de flujo difusivo de Fick y la ley de conservación de masa.

La transformación de las sustancias en el suelo puede producir un efecto importante en su transporte y acumulación en las distintas capas. La tasa de los procesos de transformación impacta en la profundidad de penetración de los contaminantes. Los procesos de transformación pueden ser químicos (fotólisis, hidrólisis, reacciones redox, etc.), biológicos (transformación microbiana) y físicos, como el decaimiento radioactivo. Matemáticamente, este proceso puede considerarse como un término sumidero (McKone, 2010). La transformación es considerada en el término (3) de la ecuación (1.1) (a), suponiendo que el ^{137}Cs es solamente transformado por su decaimiento

radioactivo. Si sólo se consideran los procesos antes mencionados, es decir se desprecia la retención irreversible, la ecuación (1.1) se reduce a:

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} = D_{eff} \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial^2 x} - v_{eff} \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} - \lambda C(x,t) \quad (1.5)$$

Esta ecuación es conocida como la ecuación de convección-dispersión. Este modelo es el más utilizado para estudiar los perfiles de actividad del ^{137}Cs . Para obtener la solución de la ecuación (1.5) se consideran las siguientes hipótesis:

- Espacio y tiempo infinitos; $x, t \in (0, \infty)$.
- La solución obtenida debe ser finita; $C(x \rightarrow \infty, t) \rightarrow 0$.
- $C(x, 0) = C_0$.
- Depósito de contaminante tipo pulso a $t = 0$; $J(0, t) = J_0(t)$.

Obteniéndose, con las condiciones anteriores, la siguiente solución analítica:

$$C(x,t) = \frac{J_0}{\exp(\lambda t)} \left\{ \frac{\exp\left(-\frac{(x-v_{eff}t)^2}{4D_{eff}t}\right)}{\sqrt{\pi D_{eff}t}} - \frac{v_{eff} \exp\left(\frac{v_{eff}x}{D}\right)}{2D_{eff}} \left(1 - \operatorname{erf}\left(\frac{v_{eff}}{2} \sqrt{\frac{t}{D_{eff}}} + \frac{x}{2\sqrt{D_{eff}t}}\right)\right) \right\} \quad (1.6)$$

donde t es el tiempo transcurrido desde el depósito. Una suposición adicional, realista para la mayoría de los casos (Bossew y Kirchner, 2004), es que sólo se considera el transporte vertical, reduciendo la descripción a un modelo unidimensional. Por otro lado, se considera que los parámetros del modelo no varían con el tiempo y que son constantes para toda la columna de suelo. Si bien los suelos presentan características que varían con la profundidad y los parámetros podrían no ser constantes en el espacio, los valores medios obtenidos podrían igualmente ser representativos del sistema suelo/radionucleido. Otra simplificación del modelo es la suposición de un equilibrio de adsorción del tipo lineal, que puede ser justificada debido a que ha pasado un tiempo relativamente grande desde el depósito inicial. La Tabla 1.16 muestra valores encontrados en la bibliografía de D_{eff} y v_{eff} en suelos de América del Sur, junto con valores medios publicados por la IAEA (acrónimo de International Atomic Energy Agency).

Tabla 1.16: v_{eff} y D_{eff} en suelos del Hemisferio Sur: Argentina (Juri Ayub et al., 2007; Juri Ayub et al., 2008), Chile (Schuller et al., 1997; 2004) y valores medios mundiales (IAEA, 2010). El código de suelo se corresponde con los perfiles de actividad del ^{137}Cs presentados en el Capítulo 1.

Suelo	v_{eff} (cm/a)	D_{eff} (cm ² /a)	Suelo	v_{eff} (cm/a)	D_{eff} (cm ² /a)
Chile			Argentina		
CS1	0,001	0,526	SL1	0,29-0,64	0,43-0,96
CS2	0,01	0,253	SL2	0,33-0,73	0,67-2,27
CS3	0,047	3,807	SL3	0,34	0,60
CS4	0,027	1,957	SL4	0,20	0,43
CS39	0,054	0,015	SL5	0,34	0,96
CS40	0,107	0,034	SL6	0,16	0,73
CS41	0,0441	0,071	SL7	0,39	0,67
CS42	0,0445	0,050	SL8	0,16	2,27
CS43	0,0314	0,146	SL9	0,13	1,38
CS44	0,0285	0,179	IAEA (ensayos nucleares)		
CS45	0,0514	0,026	todos los suelo	0,01-0,70 (0,09)	0,04-2,90 (0,22)
CS46	0,0573	0,098	arenosos	0,06-0,70 (0,20)	0,04-1,0 (0,13)
CS47	0,0869	0,044	limoso	0,01 – 0,10 (0,01)	0,39-2,9 (1,06)
CS48	-0,221	1,970	orgánicos	0,10	1,60
CS49	0,0811	0,064			
CS50	-0,203	0,025			
CS51	0,0976	0,027			
CS52	0,079	0,019			

Cuando el suelo contiene minerales que son capaces de adsorber en forma irreversible el soluto, la fijación puede convertirse en un proceso relevante. Matemáticamente, este proceso puede considerarse como un término sumidero, proporcional a la concentración del Cs (Toso y Velasco, 2001, Antonopoulos-Domis et al., 1995), como es representado en el término (4) de la ecuación (1.1) (a). Utilizando las mismas suposiciones que antes y la ecuación 6.1 (b), la solución que se obtiene es:

$$\left\{ \begin{array}{l} f(x,t) = J_0 e^{-(\lambda + k_{eff})t} \left[\frac{1}{\sqrt{\pi D_{eff} t}} e^{-\frac{(x-v_{eff}t)^2}{4D_{eff}t}} - \frac{v_{eff}}{2D_{eff}} e^{-\frac{v_{eff}x}{D_{eff}}} \operatorname{erfc}\left(\frac{v_{eff}}{2} \sqrt{\frac{t}{D_{eff}}} + \frac{x}{2\sqrt{D_{eff}t}}\right) \right] \\ b(x,t) = k_{eff} e^{-\lambda t} \int_0^t f(x,t') dt' \end{array} \right. \quad (1.7)$$

El sistema de ecuaciones (1.7) no permite solución analítica. Por lo tanto, para el ajuste de los perfiles de actividad y la obtención de los parámetros J_0 , k_{eff} , D_{eff} y v_{eff} se debe hacer un análisis de cuadrados mínimos no lineal.

Este modelo fue utilizado en trabajos previos para estudiar la migración del ^{137}Cs proveniente del accidente nuclear ocurrido en la central nuclear de Chernóbil en 1986 (Antonopoulus-Domis et al., 1995 y Toso y Velasco, 2001). En esos casos, los autores pudieron despreciar el proceso de convección, ya que el tiempo transcurrido desde el depósito al momento de analizar los perfiles era relativamente corto.

1.4 Tasa de dosis absorbida y dosis efectiva

Una de las magnitudes básicas en el área de la radioprotección es la dosis, definida como la energía depositada por la radiación por unidad de masa. Su unidad de medida en el Sistema Internacional de unidades es el Gray (Gy). A la hora de evaluar los riesgos por exposición a la radiación, esta magnitud no es suficiente, ya que no tiene en cuenta cual es el tipo de partícula (α , β o γ) ni la energía de las mismas. La magnitud radiológica que tiene en cuenta estos factores se denomina dosis equivalente efectiva, cuya unidad en el Sistema Internacional de Unidades es el Sievert (Sv).

Para la mayoría de los individuos, la exposición al fondo radioactivo natural es la parte más significativa de la dosis total recibida por radiación, con un valor promedio mundial de Dosis Equivalente Efectiva Anual (DAE_{nat}) de 2,4 mSv (UNSCEAR, 2000; 2008). Las contribuciones promedio a la DAE_{nat} son mostradas en la Figura 1.16. La inhalación de material radioactivo, especialmente Rn y sus hijos, es la principal fuente de exposición, siguiéndole en importancia la radiación γ proveniente del suelo y los materiales de construcción (UNSCEAR, 2000; 2008). Para el caso de adultos, UNSCEAR publica una dosis efectiva anual equivalente media al aire libre de 0,07 mSv (UNSEAR, 2008).

Las condiciones radiológicas naturales pueden verse afectadas por prácticas realizadas por el hombre. Las industrias explotan, procesan y transportan materiales crudos que contienen radionucleidos naturales y por lo tanto pueden alterar la composición natural del ambiente. A causa de las alteraciones de las condiciones radiológicas naturales, la población localizada en las cercanías de algunas de algunas industrias podría recibir entre 1 $\mu\text{Sv/a}$ y 10 $\mu\text{Sv/a}$ (UNSCEAR, 2000) de dosis efectiva adicionales a la debida al fondo natural, es decir aproximadamente el 0,5 % de la DAE_{nat} . Desde un punto de vista general, se puede decir que todos los suelos del planeta están contaminados con radionucleidos de vida media larga producto de los ensayos nucleares atmosféricos. Hoy en día la dosis recibida por el hombre debido a esta fuente de radiación puede despreciarse, pero tuvo un máximo de 0,15 mSv (cerca del 6 % del fondo natural) en 1963, habiéndose reducido prácticamente

en un orden de magnitud para 1979 (UNSCEAR, 2000) fundamentalmente debido a la migración del radionucleido en el suelo y al decaimiento radioactivo. Por lo tanto, al fondo natural se le suman las contribuciones provenientes del decaimiento radioactivo de radionucleidos de origen antropogénico. El hombre también puede estar expuesto a la radioactividad por someterse a prácticas médicas que utilizan radionucleidos para diagnóstico y terapia, por la manipulación de fuentes radioactivas y/o por accidentes nucleares de cualquier tipo.

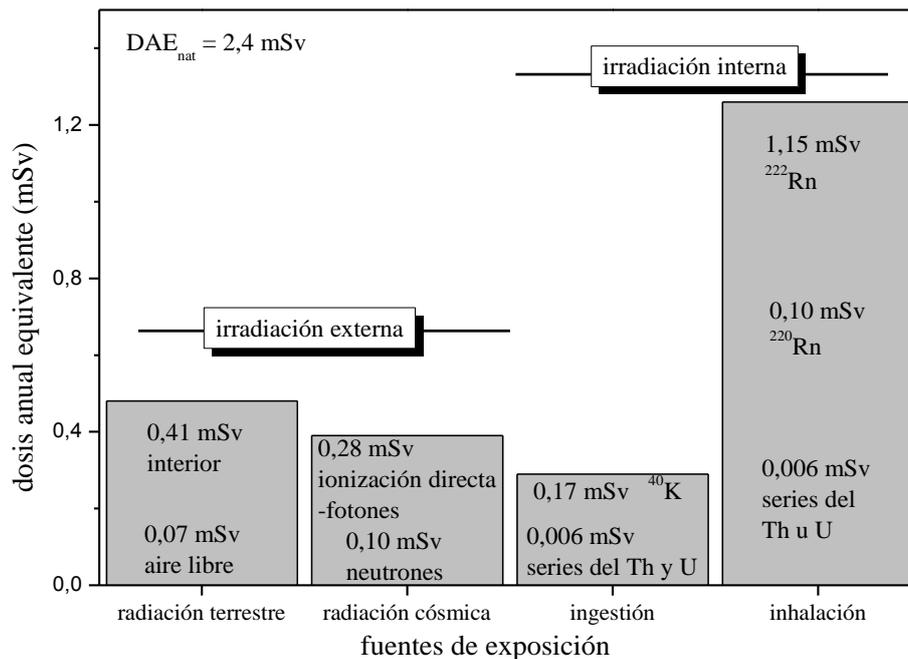


Figura 1.16: Contribuciones de las fuentes naturales de radioactividad a la dosis anual equivalente (DAE_{nat}).

1.4.1 Estimación de la contribución terrestre a la dosis absorbida y dosis efectiva

La estimación de la contribución a la tasa de dosis absorbida y dosis equivalente, para los individuos que se encuentran al aire libre, debido al decaimiento radioactivo de los radionucleidos presentes en suelos puede ser llevada a cabo a partir de la actividad de los mismos.

1.4.1.1 Radionucleidos naturales

A partir de las actividades de las cadenas naturales en suelos y de la actividad del ^{40}K se puede hacer una estimación de la tasa dosis absorbida D a un metro de la superficie terrestre (UNSCEAR 2000, UNSCEAR 2008, Al-Jundi 2009), considerando la radiación proveniente de los primeros 10 cm de suelo:

$$D(\text{nGy} / \text{hs}) = 0,462A_{^{238}\text{U}} + 0,604A_{^{232}\text{Th}} + 0,0417A_{^{40}\text{K}} \quad (1.8)$$

donde $A_{^{238}\text{U}}$, $A_{^{232}\text{Th}}$ y $A_{^{40}\text{K}}$ son las actividades en Bq/kg del ^{40}K y de las cadenas del ^{238}U y ^{232}Th , respectivamente. Los números representan factores de conversión de Bq/kg a nGy/h resumidos en la Tabla 1.17.

Por otra parte, a partir de la actividad del ^{40}K y de las cadenas del ^{232}Th y ^{238}U en suelos y considerando un factor de permanencia en el exterior de 0,2 (OF) y uno de conversión de Sv/Gy para infantes, niños y adultos, se puede estimar la dosis efectiva anual equivalente (DAE_s):

$$DAE_s (\text{Sv}) = 10^{-9} \times 24 \times 365 \times 0,2 \times \sum_i f_i \times A_i \times C_i \quad (1.9)$$

donde A_i es la actividad del radionucleido i en el suelo, f_i los factores de conversión de Bq/kg a nGy/h y C_i los correspondientes para la transformación de Gy a Sv para infantes, niños o adultos. La Tabla 1.17 muestra los coeficientes de conversión mencionados.

Tabla 1.17: Coeficientes utilizados para el cálculo de dosis a partir de la actividad de radionucleidos en suelos.

Radionucleido	f_i (nGyh ⁻¹ /Bqkg ⁻¹)	C_i (Sv/Gy)		
		infantes	niños	adultos
^{40}K	0,0417	0,926	0,803	0,709
^{232}Th	0,604	0,907	0,798	0,695
^{238}U	0,462	0,899	0,766	0,672

1.4.1.2 Radionucleidos antropogénicos

Cuando se produce la liberación de material radioactivo al medio ambiente, la dosis efectiva recibida por el hombre podría aumentar. UNSCEAR propone un modelo de tipo compartimental de las distintas vías por las que los radionucleidos pueden llegar al hombre e irradiarlo (UNSCEAR, 2000), esquematizado en la Figura 1.17. Cuando los detritos llegan al aire pueden depositarse en el suelo, ser inhalados o irradiar externamente al individuo. De los radionucleidos depositados, una parte puede ser tomada por las plantas o ser ingerida por los animales de pastoreo, pudiendo así entrar en la cadena alimentaria. Una vez que los alimentos son ingeridos los radionucleidos pueden irradiar internamente al cuerpo.

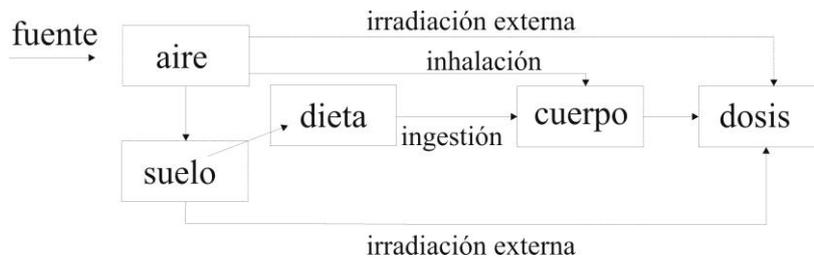


Figura 1.17: Modelo compartimental de UNSCEAR sobre las posibles vías de irradiación del hombre.

La dosis efectiva D_c debida al decaimiento de un radionucleido específico liberado en un ensayo nuclear atmosférico es:

$$D_c = P_{25} F \quad (1.10)$$

donde F es la densidad de depósito y P_{25} el coeficiente de transferencia para irradiación externa. La dosis debida a la lluvia radioactiva proveniente de los ensayos nucleares atmosféricos se debe principalmente al decaimiento del ^{137}Cs (UNSCEAR, 2000). El P_{25} para este radionucleido ha sido calculado considerando coeficientes de conversión entre la actividad en suelo y la dosis medida a 1 m de la superficie del suelo. (Beck, 1980; UNSCEAR, 2000). Suponiendo que todo el ^{137}Cs se encuentra en la superficie del suelo, los valores determinados para estimar la tasa de dosis absorbida y la dosis efectiva son de 8,89 nGy/a por Bq/m^2 y de 2,24 nSv/a por Bq/m^2 , respectivamente. Estos coeficientes son modificados cuando el ^{137}Cs migra en el suelo, bajo la hipótesis de un perfil de actividad de tipo exponencial.

Bibliografía

- Al-Jundi, J., Ulanovsky, A., Pröl, G., 2009. Doses of external exposure in Jordan house due to gamma-emitting natural radionuclides in building materials. *Journal of Environmental Radioactivity* 100, 841–846.
- Al-Masri, M.S., 2006. Vertical distribution and inventories of ^{137}Cs in the Syrian soils of the Eastern Mediterranean region. *Journal of Environmental Radioactivity*, 86, 187-198.
- Andrello, A.C., Appoloni, C.R., do Nascimento, V.F., 2007. Assesment of Soil Erosion by ^{137}Cs Technique in Native Forests in Londrina City, Parana, Brazil. *Brazilian archives of biology and technology*, 50, 1051-1060.
- Antonopoulos-Domis, M., Clouvas, A., Hiladakis, A., Kadi, S. 1995. Radiocesium distribution in undisturbed soil: Measurements and diffusion-advection model. *Health Physics*. 69,6, 949-953.
- Araujo dos Santos Junior, J., Ferrerira Cardoso, R.J.J., da Silva, C.M., Silveira S.V. and dos Santos Amaral, R., 2005. Analysis of the 40K Levels in soil using Gamma Spectrometry. *Brazilian Archives of Biology and Technology*, 48, 221-228.
- Beck, H.L., 1980. Exposure rate conversion factors for radionuclides deposited on the ground. EML-378.
- Bellenber, J. P., Stauton, S., 2008. Adsorption of ^{85}Sr and ^{137}Cs on reference minerals, with and without inorganic and organic surface coatings. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99, 40.
- Blagoeva, R., Zikovsky, L., 1995. Geographic and Vertical Distribution of Cs-137 in Soils in Canada. *Journal of Environmental Radioactivity*, 27, 3, 269–274.
- Bosew, P., Kirchner, G., 2004. Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil. Part 1: the convection–dispersion equation revisited. *Journal of Environmental Radioactivity*, 73, 127–150.
- Brouwer, E., Baeyens, B., Maes, A. y Cremers, A., 1983. Cesium and Rubidium Ion Equilibria in Illite Clay. *J. Phys. chem.*, 87, 1213-1219.

- Bujan, A., Santanatoglia, O. J., Chagas, C., Massobrio, M., Castiglioni, M., Yañez, M., Ciallella, H., Fernandez, J., 2000. Preliminary study on the use of the ^{137}Cs method for soil erosion investigation in the pampean region of Argentina. *Acta Geologica Hispanica*, 35, 271-277.
- Bujan, A., Santanatoglia, O. J., Chagas, C., Massobrio, M., Castiglioni, M., Yañez, M., Ciallella, H. & Fernandez, J., 2003. Soil erosion evaluation in a small basing though the use of ^{137}Cs technique. *Soil & Tillage Research*, 69, 127–137.
- Bunzl, K., 2002. Transport of fallout radiocesium in the soil by bioturbation: a random walk model and application to a forest soil with a high abundance of earthworms. *The Science of the Total Environment*, 293,191–200.
- Catalette, H., Dumonceau, J., Ollar P., 1998. Sorption of cesium, barium and europium on magnetite. *Journal of Contaminant Hydrology*, 35, 151-159.
- Ciallella, H.E.; Fernandez, J.A.; Lewis, E.C. y Quintana, E.E. 2003. Niveles ambientales de Sr 90 y Cs 137 Provenientes del fall-out en la República Argentina. VII Congreso Argentino de Protección Radiológica y Seguridad Nuclear.
- Claver, R., 1971. *Procedure in sedimentary Petrology*, Wiley Interscience. New York.
- Cornell, R. M., 1993. Adsorption of cesium on minerals: a review. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, 171, 2, 483 – 500.
- Correchel, V., Oliveira Santos Bacchi, O., Reichardt, K., Cereci de Maria I., 2005. Random and systematic spatial variability of ^{137}Cs inventories at references sites in south-central Brazil. *Scientia Agricola*, 62, 173-178.
- Cremers, A., Elsen, A., De preter, P., Maes, A., 1988. Quantitative analysis of radiocesium retention in soils. *Nature*, 335, 247-249.
- Dearing, J.A., 1999. *Environmental magnetic susceptibility*. British Library Cataloguing Publication.
- Desimoni, J., Montes, M.L., Errico, L., Taylor, M.A., Martinez, J., 2012. *Radioactividad en el medio Ambiente*. Editorial Académica Española. ISBN 978-3-659-00892-4.
- Dézi, I., Fetzer, C., Gombkötő, A., zúcs, I., Gubicza, J., Ungár, T., 2008. Phase transition in nanomagnetite. *Journal of Applied Physics*, 103, 104312.
- Dumat, C., Staunton, S., Reduced adsorption of caesium on clay minerals caused by various humic substances. *Journal of Environmental Radioactivity*, 46, 87-200.
- Eisenbud, M., Gesell, T., 1997. *Environmental Radioactivity, From Natural, Industrial, and Military Sources*, 4th edition. Elsevier.
- Evans, M., y Heller, F., 2003. *Environmental Magnetism, Principles and Applications of Enviromagnetics*. 1st edition. Academic Press, San Diego, USA.
- Gaudette, H.E., Grim, R. E. y Metzger, C.F., 1966. Illite: A Model Based on the Sorption Behavior of Cesium. *The American Mineralogist*, 51, 1649-1656.
- Giannakopoulou, F., Haidouti, C., Chronopoulou, A., Gasparatos, D., 2007. Sorptionbehavior of cesium on various soils underdifferent pH levels. *Journal of Hazardous Materials*, 149, 3, 553-556.
- Handl, J., Sachase, R., Jakob, D., Michel, R., Evangelista, H., Gonçalves, A. C., De Freitas, A. C., 2008. Accumulation of ^{137}Cs in Brazilian soils and its transfer to plants under different climatic conditions. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99, 271- 287.
- Hillel D., 1998. *Environmental Soil Physics*. Academic Press, San Diego.
- IAEA, 2010. *Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments*. Technical Reports SeriEs No. 472, Vienna.
- Imbellone, P., Gimenez, J.E., Panigatti J.L., 2010. *Suelos de la Región Pampeana*. Ediciones INTA. Buenos, Aires.
- Juri Ayub, J., Rizzotto, M.; Toso, J., Velasco, H., 2007. ^{137}Cs deposition and vertical migration in soils from Argentina. *Proc. International. Conf. on Environ. Radioactivity: From Measurements and Assessments to Regulation*, Vienna, Austria, www-pub.iaea.org/mtcd/meetings/announcements.asp?confid=145.
- Juri Ayub, J., Velasco, R.H., Rizzotto, M., Quintana E., Aguiar J., 2008. ^{40}K , ^{137}Cs and ^{226}Ra soil and plant content in semi-natural grasslands of Central Argentina. *The Natural Radiation Environment—8th International Symposium*, edited by A. S. Paschoa, American Institute of Physics.
- Kirchner, G., 1998. Applicability of Compartmental Models for Simulating the Transport of adionuclides in Soil. *Journal of Environmental Radioactivity*, 38, 3, 339-352.
- Krstic, D., Nikezic, D., Stevanovic, N., Jelic, M., 2004. Vertical profile of ^{137}Cs in soil. *Applied Radiation and Isotopes*, 61, 1487–1492.
- L'Annunziata, M.F., 2007. *Radioactivity: Introduction and History*. First Edition, ElSevier, Amsterdam.
- Lederer, C.M., Shirley, V. S., 1978. *Table of Isotopes - Seventh Edition*, New York. Soil Science Likar, A., Omahen, G., Lipoglavsek, M., Vidmar, T., 2001. A theoretical description of diffusion and migration of ^{137}Cs in soil. *Journal of Environmental Radioactivity*, 57, 191-201.
- Marmier, N., Delisee, A., Fromage, F., 1999. Surface Complexation Modeling of Yb(III), Ni(II), and Cs(I) Sorption on Magnetite. *Journal of Colloid and Interface Science* 211, 54–60.
- Marmier, N., Fromage F., 2000. Sorption of Cs(I) on Magnetite in Presence of Silicates. *Journal of Colloid and Interference Science*, 223, 83-88.

- McKone, T. E., 2010. Mass Transport within Soils, chapter 8, in Handbook of Chemical Mass Transport in the Environment.
- Malanca A., Gaidolfi L., Pessina, V. and Dallara, G., 1996. Distribution of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in soils of Rio Grande do Norte (Brazil). *Journal of environmental radioactivity*, 30, 55-67.
- Malanca, A. and Gaidolfi L., 1996. Natural Radiation Exposure in a municipality of the Brazilian Sertao. *Environment International*, 22, 2, 213-217.
- Murad, E., 1998. Clays and clay minerals: what can Mössbauer spectroscopy do to help understand them? *Hyperfine Interactions* 117, 39-70.
- Newman, A.C.D, Brown, G., Chemical Changes During the Alteration of Micas. *Clay Minerals*, 6, 4, 297-310.
- Odino Moure, M. R., 2010. Environmental Radioactivity Monitoring Plan in Uruguay. Technical Meeting on in-situ methods for characterization of contaminated sites. Vienna, Austria. <http://www-pub.iaea.org/mtcd/meetings/Announcements.asp?ConfID=38924>.
- Potter, D.K., Corbett, P.W.M., Barclay, S.A., Haszeldine, R.S., 2004. Quantification of illite content in sedimentary rocks using magnetic susceptibility—a rapid complement or alternative to x-ray diffraction. *Journal of Sedimentary Research*, 74:730-735.
- Rajec, P., Sucha, B., Eberl, D.D., Srodon, J., Elsass F., 1999. Effect of Illite Particle shape on Cesium Sorption. *Clays and Clays Minerals*, 47, 6, 755-760.
- Sawhney, B. L., 1964. Sorption and Fixation of Microquantities of Cesium by clay Minerals: Effect of Saturating Cations. *Soil Science Society of America*, 28, 183-186.
- Sawhney, B. L., 1970. Potassium and cesium ion selectivity in relation to clay mineral structure. *Clays and Clay Minerals*, 18, 47-52.
- Sawhney, B. L., 1972. Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: A review. *Clays and Clay Minerals*, 20, 93-100.
- Schuller, P.; Ellies, A., Kirchner, G., 1997. Vertical migration of fallout ^{137}Cs in agricultural soils from southern Chile. *Science of the Total Environment*, 193, 197–205.
- Schuller, P., Voigt, G., Handl, J., Ellies, A., Oliva, L., 2002. Global weapons fallout ^{137}Cs in soils and transfer to vegetation in south-central Chile. *Journal of Environmental Radioactivity*, 62, 181-193,
- Schuller, P., Bunzl, K., Voigt, G., Ellies, A., Castillo, A., 2004. Global fallout ^{137}Cs accumulation and vertical migration in selected soils from south Patagonia, *Journal of Environmental Radioactivity*, , 71, , 43-60.
- Singh, B.K., Jain, A., Kumar, S., Tomar, B.S. y Tomar, R., 2009. Role of magnetite and humic acid in radionuclide migration in the environment. *Journal of Contaminant Hydrology*. 106, 144-149.
- Society of America, 2008. Glossary of Soil Science Terms. <https://www.soils.org/publications/soils-glossary>.
- SSSA, 2008. Methods for Soil Analysis. Part 5 – Mineralogical methods. Inc. Madison, Wisconsin, USA.
- Poinssot, C., Baetens, B., Bradbury, M.H., 1999. Experimental and modelling studies of caesium sorption on illite. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63, 19/20, 3217–3227.
- Staunton, S., Dumat, C., Zsolnay, A., 2002. Possible role of organic matter in radiocaesium adsorption in soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 58, 163–173.
- Todorovic, M., Milonjic, S. K., Comor, J.J., 1992. Adsorption of Radioactive Ions $^{137}\text{Cs}^+$, $^{85}\text{Sr}^{2+}$, and $^{60}\text{Co}^{2+}$ on Natural Magnetite and hematite. *Separation Science and Technology*, 27, 5, 671-679.
- Toso, J.P., Velasco, R.H. 2001. Describing the observed vertical transport of radiocesium in specific soils with three time-dependent models. *Journal of Environmental Radioactivity*, 53, 133-144.
- UNSCEAR., 2000. In: Sources and effects of ionizing radiation, Report of the General Assembly with Scientific Annexes, Vol. 1, New York.
- UNSCEAR., 2008. In: Sources and effects of ionizing radiation, Report of the General Assembly with Scientific Annexes, Vol. 1, New York.
- Vandenbergh, R.E., 1991. Mössbauer Spectroscopy and Applications in Geology, International Training Centre for Post-graduate Soil Scientists. Geological Institute, Faculteit der Wetenschappen, Faculty of Science, Belgium.
- Vejsada, J., Hradil, D., Randa, E., Jelinek, E., Stulik, K., 2005. Adsorption of cesium on Czech smectites-rich clays-A comparative study. *Applied Clay Science*, 30, 53-66.
- Wu, J., Li, B., Liao, J., Feng, Y., Zhang, D., Zhao, J., Wen, W., Yang, Y., Liu, N., 2009. Behavior and analysis of Cesium adsorption on montmorillonite mineral. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100, 914–920.

Capítulo 2: Descripción del área de estudio

2.1 Características generales

Este trabajo comprende el muestreo de suelos pertenecientes a 3 partidos ubicados al noreste de la provincia de Buenos Aires: La Plata, Berisso y Berazategui (Figura 2.1).

El partido de La Plata, con un área de alrededor de 900 km², limita al NE con los partidos de Ensenada y Berisso, al NO con los de Florencio Varela y Berazategui, al SO y S con San Vicente y Coronel Brandsen y al SE con el partido de Magdalena. Según, el censo nacional realizado en 2010, la población del partido es de 654324 habitantes distribuidos en el casco urbano fundacional, Villa Elisa, Arturo Seguí, El Peligro, City Bell, Gonnet, Ringuelet, Tolosa, Hernandez-Gorina, San Carlos, Melchor Romero, Abasto, Olmos, Los Hornos, Etcheverry, Altos de San Lorenzo y Villa Elvira. En este partido se desarrollan una gran diversidad de actividades con distintos usos del suelo, como agropecuario intensivo (59,22 %), urbano (13,85 %), agrícola intensivo (12,44 %), baldíos urbanos (8,16%), recreativo (2,60 %), extractivo (1,04 %), forestal (0,94 %), agrícola experimental (0,12 %), *feed-lot* (0,04 %), y enterramiento de basura (0,02 %) (Hurtado et al., 2006a).

El partido de Berazategui abarca una superficie de alrededor de 217 km² y limita al SE con los partidos de La Plata y Ensenada, al SO con Florencio Varela, al NO con Quilmes y al NE con el Río de la Plata. Según el censo nacional realizado en 2010, el partido cuenta con una población de 324244 habitantes. Debido a las características de los suelos, la planicie costera presenta una baja densidad poblacional. El uso del territorio se divide en reserva (36,66 %), urbano (20,39 %), agrícola intensivo (9,44%), baldíos (9,26%), agropecuario extensivo (7,79%), recreativo (3,83%), vías de comunicación (3,28 %), servicios (2,33%), *countries*, clubes de campo y barrios cerrados (2,27%), forestal (1,94 %), industrial (1,62%), extractivo superficial (0,14%), extractivo profundo (0,97%) y avícola (0,07 %) (Hurtado et al., 2006b).

El partido de Berisso, con una superficie de 144 km², limita con los partidos de Ensenada (NO), La Plata (SO) y Magdalena (SE) y con el río de La Plata (NE). Según el censo nacional realizado en 2010, el partido cuenta con una población de 88470 habitantes. El suelo se usa de diversas maneras, incluyendo uso pecuario extensivo (51,54 %), forestal (22,02%), urbano (9,74%), baldíos urbanos (7,01%), agrícola intensivo (2,93%), industrial (2,63%), recreativo (1,81%), portuario (0,79%), otros (0,60%), servicios (0,57%), extractivo (0,35%), y enterramiento de basura (0,01%) (Gimenez et al., 2005).

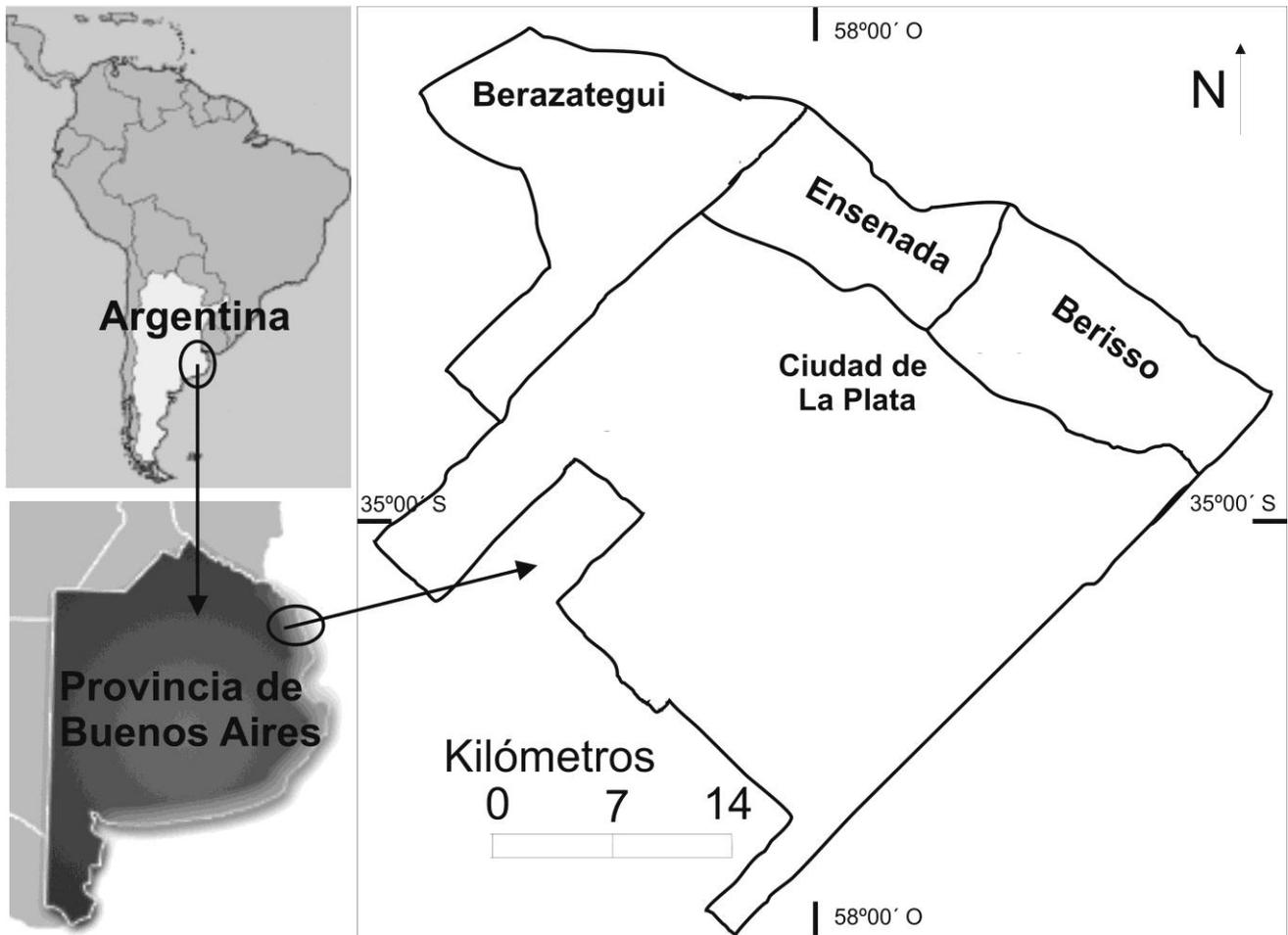


Figura 2.1: Localización de la región estudiada.

2.1.1 Clima

Las características climáticas de los 3 partidos descriptas se basan en datos meteorológicos proporcionados por la Estación Climática de La Plata, ya que cuenta con un registro continuo (desde 1909 a 2005) de temperatura y precipitaciones. La posición geográfica de la estación es $34^{\circ} 55' S$, $57^{\circ} 57' O$ con una altura de 15 m sobre el nivel del mar (Giménez et al., 2005; Hurtado et al., 2006a, 2006b).

La temperatura media anual es de $16,2^{\circ}C$, con enero como el mes más cálido (promedio de $22,8^{\circ}C$) y julio como el más frío con un promedio de $9,9^{\circ}C$. En relación al viento, la intensidad media anual es de 12 km/h, predominando el proveniente del E y secundariamente los de NE y NO. Las mayores intensidades se dan en octubre, diciembre y enero, con valores medios de 15 km/h a 17 km/h. La humedad relativa media anual es de 77 %, variando entre 85 % (junio) y 70 % (enero).

El régimen de temperatura del suelo fue estimado a partir de la temperatura del aire según lo establecido por las normas de la Taxonomía de Suelos (Soil Survey Staff, 1999). De acuerdo con las mismas, la temperatura media anual del suelo a los 50 cm de profundidad es 17,2 °C y las temperaturas medias del suelo de invierno (junio, julio, agosto) y de verano (diciembre, enero y febrero) a la misma profundidad son de 11,0 °C y 21,4 °C, respectivamente.

2.1.2 Topografía y Geomorfología

Dentro del área comprendida por los tres partidos se pueden diferenciar tres unidades geomorfológicas principales (de acuerdo al origen de los materiales y los procesos intervinientes): área de influencia estuárico - marina, zona de origen mixto y área de influencia continental.

En cuanto a la topografía se definen dos zonas con características bien diferentes, correspondiendo a las zonas del área de influencia estuárico marina (llanura baja) y al área de influencia continental (llanura alta). En el partido de Berisso domina la zona de origen estuárico marina, mientras que en el de La Plata y Berazategui la de origen continental.

El área de influencia estuárico marina o planicie costera, es una zona con relieve plano a plano - convexo paralela a la costa, con presencia de áreas deprimidas. Las alturas van desde 0 m a 5 m sobre el nivel del mar y las pendientes son menores al 0,03 %. Está cubierta por depósitos marinos y fluviales debidos a las descargas del Río de La Plata y al transporte fluvial. Dentro de esta zona se distinguen otras subdivisiones: playa, llanura aluvional, cordón conchil, llanura de fango, bañado, llanura de marea interior y antiguos canales de marea.

La zona de influencia mixta es la que separa a la planicie costera del área de influencia continental. Dentro de esta región se encuentran dos tipos de unidades geomorfológicas menores: el antiguo estuario interior, la antigua franja costera y el interfluvio de origen mixto.

El área de influencia continental pertenece a la Pampa Ondulada y se caracteriza por tener un modelado fluvial, con suaves ondulaciones que afectan depósitos loessicos pampeanos. Las cotas encontradas aquí son mayores a 5 m sobre el nivel del mar y se observa un interfluvio principal con rumbo aproximado NO-SE, con alturas máximas de 30 m sobre el nivel del mar hacia el NO y de 20 m sobre el nivel del mar en el SE. Este interfluvio actúa como divisoria de aguas, tanto en los partidos de La Plata como en el de Berazategui, observándose dos vertientes principales: la del Río de La Plata y la del río San Borombón. Dentro de esta región se pueden distinguir las siguientes subdivisiones: interfluvio convexo, interfluvio plano, área con pendiente, planicie de inundación, cañadas, cubetas de deflación y lagunas (Giménez et al., 2005; Hurtado et al., 2006a, 2006b).

2.1.3 Suelos

En el área de estudio se tienen dos tipos de suelos según el material que les dio origen: área continental con suelos desarrollados a partir de sedimentos loessicos eólicos y fluviales, y el área de la planicie costera con sedimentos aportados por intrusiones marinas. Entre ambos existe una zona de transición en la que los suelos han evolucionado a partir de materiales de origen mixto (Giménez et al., 2005; Hurtado et al., 2006a, 2006b).

2.2 Suelos estudiados

La Tabla 2.1 muestra las posiciones geográficas y la unidad cartográfica a la que pertenecen los suelos estudiados, mientras que la Figura 2.2 presenta la localización de los sitios monitoreados. En las regiones investigadas, se llevaron a cabo muestreos tanto de suelo superficial como en profundidad (perfilado). Entre los perfiles de suelos estudiados, cuatro de ellos se encuentran en el partido de La Plata (zonas de Arroyo Correa, El Peligro, Los Hornos y Radio Provincia), uno en Berisso (Villa Argüello) y uno en el partido de Berazategui (Parque Pereyra Iraola). Los 6 puntos pertenecen a la cuenca del Río de La Plata. El muestreo superficial fue llevado a cabo abarcando los tres partidos mencionados y en la región de Ezeiza, en las cercanías de un Centro Atómico.

Tabla 2.1: Suelos estudiados – localización, unidades cartográficas y taxonómicas (Giménez et al., 2005; Hurtado et al., 2006a, 2006b).

Suelo	Posición geográfica	Unidad cartográfica	Unidad taxonómica
		Perfilado	
El Peligro (EP)	34°54'27,12"S 58° 8'21,90"O	IC- área con pendiente	Serie Arturo Seguí
Arroyo Correa (AC)	35° 3'15,66"S 57°51'12,84"O	IC- área con pendiente	Consociación serie Gorina
Los Hornos (LH)	35°0'09,96"S 57°58'29,04"O	IC- área con pendiente	Arturo Seguí y Gorina
Villa Argüello (VA)	34°54'8,58"S 57°55'6,00"O	IEM-llanura de fango	Consociación Natracuertes típicos fase pobremente drenada
Parque Pereyra Iraola (PP)	34°48'27,60"S 58° 5'14,88"O	IEM- llanura de fango	Consociación Natracuertes típicos fase imperfecta y pobremente drenada
Radio Provincia (RP)	34°50'30,48"S 58° 4'33,78"O	IEM- llanura de fango	Consociación Natracuertes típicos y epiacuertes típicos
	muestreo superficial – región La Plata		
S1	34°59'13,02"S 57°59'48,30"W	IC- Interfluvio plano	Asociación de serie Estancia Chica (80%) y Los Hornos (20%)
S2	34°58'56,34"S 58°00'28,92"W	IC- Interfluvio plano	Asociación de serie Estancia Chica (80%) y Los Hornos (20%)
S3	35°00'41,94"S 57°44'17,28"W	Partido Magdalena-sin datos	Partido Magdalena-sin datos
S4 (ACsup2)	34°57'51,24"S 57°45'39,30"W	Zona mixta-intefludio de origen mixto	Consociación de Hapludoles oxiácuicos
S5 (PP)	34°48'05,04"S 58°50'02,46"W	IEM-Llanura de fango	Complejo: Natracuertes típicos, fases imperfecta y pobremente drenadas
S6	34°53'20,65"S 57°51'30,25"O	IEM-Llanura aluvional	Natracuertes típicos, fase imperfectamente drenada
S7	34°52'36,55"S 57°49'39,57"O	IEM-Cordón Litoral	Fluvacuertes típicos
	muestreo superficial – región Ezeiza		
EZE1	34°49'40,38"S 58°35'08,22"W	-	-
EZE2	34°49'18,00"S 58°35'08,22"W	-	-
EZE3	34°50'41,60"S, 58°34'43,70"W	-	-
EZE4	34°50'27,70"S 58°45'07,70"W	-	-

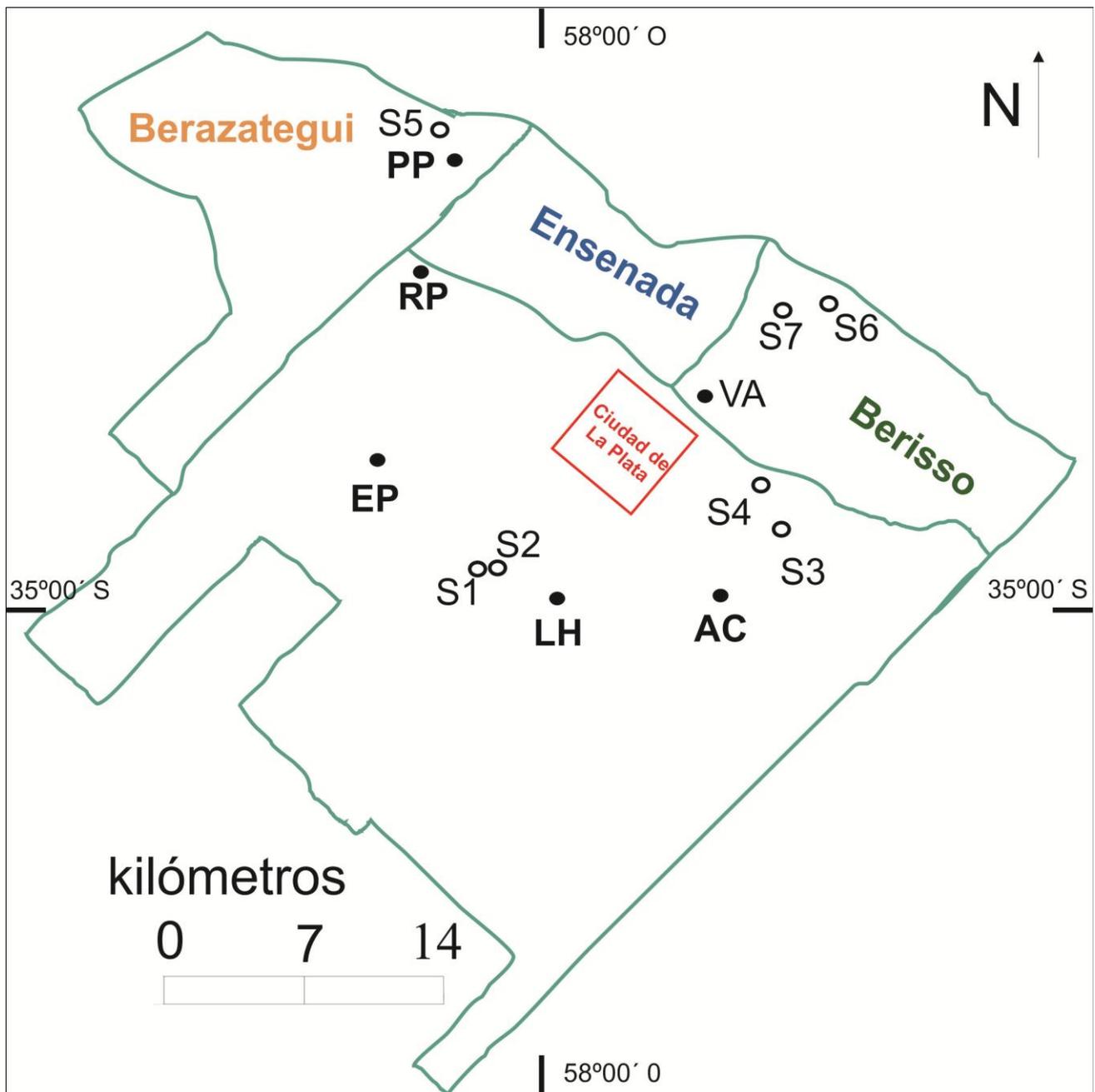


Figura 2.2: Localización de los suelos muestreados. Los círculos llenos indican los sitios donde se realizó perfilado, mientras que los vacíos donde se tomaron muestras superficiales.

2.2.1 Partido de La Plata – Zona El Peligro (EP)

El sitio de muestreo, perteneciente a la zona de influencia continental (unidad cartográfica: área con pendiente), se encuentra en la consociación de la serie Arturo Seguí (Arguidoles vérticos, fina, montmorillonítica, térmica). Esta serie incluye suelos de fuerte desarrollo, moderadamente bien drenados, de permeabilidad lenta o muy lenta (Hurtado et al., 2006a). Presentan horizontes A del tipo franco limosos o franco arcillo limoso con 25-30 % de arcilla y espesores de 20-30 cm. Generalmente le subyace un horizonte de transición BA (20/30 – 65 cm), seguido por uno Btss1. Son

suelos con una buena provisión de materia orgánica y nitrógeno. La Tabla 2.2 muestra las características de este tipo de suelos, mientras que la Tabla 2.3 resume la composición mineralógica de partículas con tamaño menor a 2 μm .

Tabla 2.2: Características de los suelos de la serie Arturo Seguí (Hurtado et al., 2006a).

Horizonte		A	BA	Btss1
profundidad (cm)		0-22	22-30	30-65
pH (pasta)		5,70	5,90	6,20
textura	arcilla (%)	26,55	26,90	62,50
	limo (%)	66,55	64,54	31,69
	arena (%)	6,95	8,56	5,81
materia orgánica (%)		4,40	2,76	1,17

Tabla 2.3: Composición mineralógica de la fracción arcilla (Hurtado et al., 2006a).

Horizonte	illita	esmectitas	interestratificados	caolinita
A	54	43		2
BA	57	41		1
Btss1	34	65		1

2.2.2 Partido de La Plata – Zona Arroyo Correa (AC)

El suelo de la zona de Arroyo Correa pertenece a la zona de influencia continental, unidad morfológica de área con pendiente y suelos tipo consociación de la serie Gorina (hapludert típico, familia fina, montmorillonítica, térmica). Estos suelos se caracterizan por ser suelos profundos, moderadamente bien drenados, de permeabilidad lenta o muy lenta. Poseen un horizonte A oscuro de 20-30 cm de espesor. Presentan textura franco arcillo limosa, con arcillas entre el 32% y el 40%. Por debajo le puede seguir un horizonte AB de textura arcillo limosa. Son suelos bien provistos de materia orgánica y nitrógeno y poseen reacción levemente ácida en superficie y levemente alcalina en profundidad.

La Tabla 2.4 muestra las características de este tipo de suelos. En este caso no se presenta el análisis mineralógico, ya que los datos disponibles corresponden a partículas menores a 1 μm .

El horizonte Ap se desarrolla desde superficie hasta 14 cm de profundidad, con color pardo muy oscuro en húmedo y presenta clase textural franco arcillo limoso, bloques subangulares finos y débiles, con tendencia granular, es duro, friable, plástico y adhesivo y comúnmente presenta raíces. Por su parte, el horizonte A (14 – 23 cm de profundidad) presenta color pardo muy oscuro en húmedo y textura franco arcillo limoso. Los bloques encontrados son subangulares, medios,

moderados. El suelo es friable, plástico y adhesivo y comúnmente presenta raíces. Entre los 23-50 cm de profundidad se desarrolla el horizonte Btss1, con color negro en húmedo. Este horizonte es de tipo arcilloso y contiene prismas que rompen a bloques angulares, es muy plástico y muy adhesivo (Hurtado et al., 2006a).

Tabla 2.4: Principales características de los suelos de la Serie de Gorina (Hurtado et al., 2006a).

Horizonte	Ap	A	Btss1
profundidad (cm)	0-14	14-23	23-50
pH (pasta)	5,60	5,80	5,80
textura			
	arcilla (%)	35,09	35,85
	limo (%)	57,60	58,20
	arena (%)	7,31	5,95
materia Orgánica (%)	4,57	4,41	2,02

2.2.3 Partido de La Plata – Zona Los Hornos (LH)

El suelo analizado de la zona de Los Hornos pertenece a la zona de influencia continental, unidad de interfluvio y es del complejo series Arturi Seguí (60%) y Gorina (40%) (Hurtado et al., 2006a). Las características de los suelos son aquellas mencionadas para la zona de Arroyo Correa (SP2, ver Tabla 2.4).

2.2.4 Partido de Berisso – Zona Villa Argüello (VA)

El suelo estudiado perteneciente al partido de Berisso se encuentra en la zona de influencia estuárico marina, en la unidad de planicie costera, en la zona de llanura de fango. La llanura de fango se trata de una zona de perfil plano cóncavo, pobremente drenada donde se desarrollan bañados o pantanos. Los sedimentos que conforman este ámbito tienen un origen relacionado con procesos desarrollados en ambientes marino y continental, aunque el modelado de esta unidad se vincula principalmente con la acción marina. La altura respecto del nivel de mar de la zona de muestreo está entre 2,5 m y 5 m y se encuentra dentro de la vertiente del Río de La Plata.

En cuanto a los suelos se encuentra en la zona de consociación de natracuertes típicos, fase pobremente drenada, unidad que ocupa extensos sectores planos o plano-cóncavos. Los suelos presentan anegamiento en forma frecuente y agua freática salina muy cercana a la superficie. Tenores muy elevados de sodio intercambiable y sales solubles. La Tabla 2.5 muestra las características de uno de estos suelos.

Tabla 2.5: Principales características de los suelos natracuertes típicos pobremente drenados (Giménez et al., 2005).

Horizonte	A	Btn	2BCngss
profundidad (cm)	0-10	10-21	21-110+
pH (pasta)	7,0	7,2	7,8
textura			
arcilla (%)	70,1	73,2	78,8
limo (%)	26,6	25,0	15,3
arena (%)	3,3	1,8	5,9
materia orgánica	9,46	6,59	1,02

El horizonte A, desarrollado entre la superficie y 10 cm de profundidad, presenta color pardo muy oscuro en húmedo, textura arcillosa y bloques subangulares. Es firme, plástico y adhesivo y presenta raíces abundantes. Por su parte, el horizonte Btn (10-21 cm de profundidad) es color negro en húmedo, con textura arcillosa, bloques angulares, muy firme, muy plástico y muy adhesivo, mientras que el 2BCngss (21-110+ cm) es gris oscuro en húmedo, con textura arcillosa y bloques subangulares. Es firme, muy plástico y muy adhesivo, presentando moderada reacción de carbonatos en la masa. Puede contener concreciones de Fe-Mn y carbonato de Ca, las raíces encontradas son escasas (Giménez et al., 2005).

2.2.5 Partido de Berazategui – Parque Pereyra Iraola (PP)

El suelo estudiado se encuentra en la zona de unidad morfológica de llanura de fango, perteneciente a la zona de influencia estuárico marina. Los suelos de esta región corresponden a natracuertes típicos, fases imperfecta y pobremente drenadas. El material a partir del cual se han desarrollado los suelos posee contenidos muy elevados de arcilla (60-80 %), parte de la cual es de tipo expansiva. Esto confiere a los suelos rasgos acentuados de contracción-expansión revelados por superficies de deslizamiento abundantes y grietas que llegan a la superficie en períodos de deficiencia hídrica. En la mayor parte de los casos, tienen contenidos elevados de Na intercambiable y de sales solubles. En general, tienen deficiencias en el drenaje por anegamiento superficial y por inundación en el caso de crecientes extraordinarias del Río de la Plata. El nivel freático suele estar cercano a la superficie durante períodos prolongados. Existen sectores ligeramente más elevados y de forma alargada, donde las condiciones de drenaje son algo mejores. El análisis mineralógico de la fracción arcilla revela contenidos significativos de caolinita, lo que diferencia a estos sedimentos marinos de los de origen continental. (Hurtado et al., 2006b).

2.2.6 Partido de La Plata – Radio Provincia (RP)

El suelo analizado del predio Radio Provincia pertenece a la unidad cartográfica complejo de natracuertes típicos (70 %) y epiacuertes típicos (30%), del área de origen estuárico marina o llanura costera del Río de La Plata, en la unidad llanura costera de fango (Cavallotto, 1995). Los suelos están constituidos principalmente por arcillas marinas. Presentan muy baja permeabilidad, anegabilidad frecuente, el nivel freático se encuentra muy cerca de la superficie, texturas extremadamente finas, conteniendo altos niveles de Na intercambiable y rasgos hidromórficos y vérticos bien marcados. Tienen varios rasgos comunes, la diferencia está en la concentración de Na intercambiable (alto en los natracuertes y bajo en los epiacuertes). Estos suelos presentan drenaje pobre o muy pobre, permeabilidad muy lenta, siendo susceptibles a anegamiento frecuente.

El horizonte A (0-20 cm de profundidad) presenta color pardo grisáceo oscuro en húmedo y clase textural franco arcillo limoso. El medio es masivo, duro, firme, plástico y adhesivo y presenta moderada reacción de carbonatos. Por su lado, el horizonte 2Cgkss1, desarrollado entre 20 cm y 73 cm de profundidad, es de color pardo grisáceo muy oscuro en húmedo, de textura arcilloso y con bloques angulares, medios y gruesos. Es extremadamente duro, muy firme, muy plástico, muy adhesivo. Presenta superficies de deslizamiento abundantes y concreciones de Fe-Mn y fuerte reacción de carbonatos en la masa. La Tabla 2.6 muestra las características de interés.

Tabla 2.6: Características típicas de los suelos tipo complejo de natracuertes típicos y epiacuertes típicos (Hurtado et al., 2006a).

Horizonte	A	2Cgkss1
profundidad (cm)	0-20	20-73
pH (pasta)	7,8	9,3
textura		
Arcilla (%)	17,5	72,6
Limo (%)	63,7	22,1
Arena (%)	18,8	5,3
materia orgánica (%)	2,93	1,24

2.2.7 Ezeiza (EZE)

Los datos disponibles de los suelos de la región de Ezeiza se resumen en La Tabla 2.7 (Beninson et al., 1966).

Como puede verse, los suelos de la región de Ezeiza contienen un porcentaje de fracción de arena mucho mayor a los de la región de La Plata, mientras que el pH y el contenido de materia orgánica son similares a lo determinado para suelos de dicha región.

Tabla 2.7: Características de suelos de la región de Ezeiza.

Profundidad (cm)	10	20	30	
pH	7,3	7,1	6,9	
textura	Arcilla (%)	22,9	26,9	24,6
	Limo (%)	30,0	30,7	33,0
	Arena (%)	43,4	39,5	39,9
materia orgánica (%)	3,7	2,9	2,5	

Bibliografía

Beninson, D., Migliori, A., Mugliaroni, H., Vander Elst, E., 1966. Comportamiento de productos de Fisión en suelos. Comisión Nacional de Energía Atómica, 171.

Cavallotto, J.L., 1995. Evolución geomorfológica de la llanura costera ubicada en el margen sur del Río de La Plata. Tesis doctoral, Facultad de Ciencias Naturales y Museo. Universidad Nacional de La Plata.

Gimenez, J.E., Cabral, M.G., Hurtado, M.A., 2005. Elaboración y Transferencia de cartografía Temática e Implementación de un Sistema de Información Geográfica para el Planeamiento (Partido de Berisso). Comisión de Investigaciones Científicas de la Provincia de Buenos Aires. Ed. Universidad Nacional de La Plata.

Hurtado, M.A., Giménez, J.E., Cabral, M.G., 2006a. Análisis ambiental del partido de La Plata. Aportes al ordenamiento territorial. Consejo Federal de Inversiones. Ed. Universidad Nacional de La Plata.

Hurtado, M.A., Giménez, J.E., Cabral, M.G., 2006b. Suelos del partido de Berazategui como base para el planeamiento ambiental y ordenamiento territorial. Contrato de Obra entre Consejo Federal de Inversiones y Facultad de Ciencias Naturales y Museo. Ed. Universidad Nacional de La Plata.

Soil Survey Staff., 1999. Soil Taxonomy. A basis system of soil classification for making and interpreting soil surveys. Agriculture Handbook N°436, 2th edition, Washington, D.C.

Capítulo 3: Técnicas experimentales

Las propiedades físico-químicas de los suelos determinan, en gran medida, la capacidad para muchos de sus usos. Las condiciones físicas y químicas influirán de manera importante en la interacción de nutrientes y contaminantes con los componentes del suelo, esto es, en su biodisponibilidad.

Con el fin de realizar la caracterización radiológica y relacionar la actividad de los radionucleidos con propiedades de los suelos, las muestras fueron analizadas utilizando diferentes técnicas experimentales.

En cada uno de los sitios analizados se determinó la dosis efectiva equivalente a 1 m del suelo y el análisis radiológico de las muestras colectadas fue realizado mediante espectroscopia gamma, utilizando un detector de germanio hiperpuro de alta resolución. El pH fue determinado en agua destilada y el porcentaje de carbono orgánico (C_{org}) según el método de Walkley Black. La susceptibilidad magnética AC fue medida utilizando un susceptómetro AC, mientras que la susceptibilidad de alto campo, la magnetización de saturación, el campo magnético coercitivo de las muestras fueron estudiadas mediante magnetómetro de muestra vibrante (VSM). El análisis hiperfino de las fases de Fe en suelos y arcillas fue realizado con Espectroscopia Mössbauer, mientras que la textura fue estipulada utilizando el método de la pipeta. Las fases cristalinas presentes en la fracción de arcilla, previamente separada en el análisis textural, fueron estudiadas con Difracción de Rayos X. En este capítulo se hará referencia a todas estas técnicas y se analizará la información que se puede extraer de ellas.

3.1 Muestreo de suelos

La selección de los suelos estudiados se basó en varios criterios. Como fuera presentado en el Capítulo 2, la región de la ciudad de La Plata cuenta con dos zonas geomorfológicas principales, por lo que se buscaron lugares pertenecientes a ambas regiones. Además, dado que se estudiarán perfiles de actividad no natural, se requirieron de perfiles de suelo no perturbados, al menos en los últimos 40 años. Además, cada sitio particular fue seleccionado de forma tal que el espacio fuera abierto, es decir, que no hubiera árboles o edificaciones que podrían haber impedido el depósito de radionucleidos artificiales en la superficie terrestre. En este punto, se consultó con los vecinos de los suelos muestreados y en la zona de Pereyra con el encargado del parque ecológico. Por otro lado, se buscó que los sitios estuviesen bien drenados, sin pedregullo y sin inclinaciones.

Los perfiles de suelo fueron tomados por única vez, siendo así cada una de las muestras una muestra única, observando a simple vista que los laterales de las calicatas no presentaran diferencias entre sí. Así, si los cuatro laterales presentaban características similares, se consideró que el punto de muestreo era representativo del área. Por otra parte, cuando fue posible, en las cercanías de cada perfil se recolectaron muestras superficiales de suelo para comparar resultados. La comparación de la muestra superficial, colectadas en las cercanías del lugar donde se realizó el perfil, con aquella menos profunda del perfil, sirvió como corroboración de la representatividad del punto de muestreo.

Una vez recolectadas, las muestras fueron almacenadas en bolsas *ziploc*, y colocadas en bolsa negra para su transporte y almacenadas hasta su procesamiento en un lugar oscuro y fresco.

Para el muestreo en profundidad se realizó una calicata de aproximadamente 60 cm de profundidad y 1 m de diámetro, teniendo así espacio suficiente para realizar un muestreo paralelo a la superficie del suelo. Para la colección de las muestras se utilizó una pala metálica de 20x20x3 cm³, tomando desde superficie hasta 50 cm de profundidad capas de suelo de entre 2 cm y 3 cm de espesor. Las muestras para el análisis hiperfino fueron colectadas simultáneamente mediante tubos plásticos, con el fin de evitar la contaminación con Fe. La Figura 3.1 muestra imágenes de la colección de muestras en campo.



Figura 3.1: Recolección de muestras de suelos.

El muestreo superficial (0 – 10 cm) fue realizado utilizando un trépano de 15 cm de largo y 10 cm de diámetro. La Tabla 3.1 resume la nomenclatura de las muestras colectadas para cada suelo, junto con la profundidad media de la capa.

Tabla 3.1: Muestras colectadas por perfil, nomenclatura (n) y profundidad media (pm), en cm.

El Peligro (EP)		Arroyo Correa (AC)		Los Hornos (LH)		Villa Argüello (VA)		Parque Pereyra Iraola (PP)		Radio Provincia (RP)	
n	pm	n	pm	n	pm	n	pm	n	pm	n	pm
EP-1	2,3	AC-1	1,8	LH-1	3,5	VA-1	4,0	PP-1	3,0	RP-1	3,5
EP-2	4,4	AC-2	4,5	LH-2	7,0	VA-2	7,8	PP-2	6,5	RP-2	7,5
EP-3	6,5	AC-3	7,3	LH-3	11,5	VA-3	10,5	PP-3	9,5	RP-3	11,0
EP-4	9,4	AC-4	9,5	LH-4	15,5	VA-4	14,3	PP-4	12,5	RP-4	14,0
EP-5	12,1	AC-5	12,0	LH-5	17,5	VA-5	17,8	PP-5	15,8	RP-5	17,5
EP-6	14,9	AC-6	15,0	LH-6	19,3	VA-6	20,0	PP-6	18,5	RP-6	19,5
EP-7	18,3	AC-7	18,8	LH-7	21,5	VA-7	22,8	PP-7	20,8	RP-7	22,0
EP-8	21,3	AC-8	21,8	LH-8	24,3	VA-8	26,8	PP-8	23,3	RP-8	25,5
EP-9	23,5	AC-9	25,0	LH-9	27,3	VA-9	29,8	PP-9	25,5	RP-9	30,0
EP-10	25,5	AC-10	29,0	LH-10	29,5	VA-10	31,8	PP-10	28,3	RP-10	33,0
EP-11	27,5	AC-11	32,5	LH-11	32,8	VA-11	34,3	PP-11	31,0	RP-11	34,8
EP-12	29,3	AC-12	35,5	LH-12	36,3	VA-12	36,8	PP-12	33,5	RP-12	36,8
EP-13	32,8	AC-13	39,0	LH-13	38,8	VA-13	39,3	PP-13	36,5	RP-13	40,3
EP-14	35,3	AC-14	41,5	LH-14	41,5	VA-14	42,3	PP-14	40,0	RP-14	44,3
EP-15	37,3			LH-15	45,0	VA-15	45,5	PP-15	42,8	RP-15	47,8
EP-16	40,3			LH-16	48,8	VA-16	48,5	PP-16	44,8		
EP-17	43,0										
EP-18	45,6										
EP-19	49,0										

3.2 Medidas de dosis

Las medidas de dosis en cada uno de los sitios estudiados se realizaron utilizando un detector Geiger Müller. Este tipo de detectores está formado por dos placas entre las cuales se coloca un gas, en general argón, junto con un gas de apagado (*quenching*). Entre las placas se aplica una diferencia de potencial relativamente grande. Al llegar la radiación al detector se generan pares electrón – hueco. Debido a la diferencia de potencial, las partículas cargadas son aceleradas hacia las placas de cargas opuestas. Mientras que los electrones fluyen, interactúan con los átomos de argón y generan electrones secundarios, quienes a su vez generan nuevos electrones, produciéndose un efecto en cascada. Por su parte, el argón ionizado por efecto de la radiación interactúa con el gas de apagado, para evitar no se generen más electrones. Este detector no es capaz de distinguir la energía de la radiación que produjo el primer par ion – hueco, y cualquier energía depositada producirá la misma altura de pulso.

El detector utilizado en este trabajo fue un Geiger Müller portátil “*Radiation Alert*”, de diámetro efectivo de 45 mm y con una ventana de mica que permite la entrada de radiación α , β y gamma (Figura 3.2, a). Una vez en el campo, el dispositivo se coloca mediante un soporte a una distancia de 1 m del suelo (Figura 3.2, b). En cada punto de muestreo se tomaron entre 120 y 150 datos, para obtener un resultado de dosis estadísticamente adecuado.

Una vez que los datos de cada uno de los sitios fueron procesados, se calcula la dosis anual equivalente efectiva. A fin de comparar estos datos con aquellos obtenidos de la actividad natural en suelos, se considera que un individuo pasa un 20 % del tiempo en el exterior, como fuera mencionado en la Sección 1.3.1.1.



Figura 3.2: a) Detector Geiger Müller y b) arreglo experimental para la medición de dosis, detector colocado a 1 m de la superficie terrestre.

3.3 Medidas de actividad de emisores γ

Dentro de los detectores más utilizados para la determinación de actividad de radionucleidos emisores gamma en muestras ambientales en general y en suelos en particular, está el detector de tipo semiconductor de germanio hiperpuro (HPGe), debido a su mayor sección eficaz para el efecto fotoeléctrico y su mayor volumen sensible respecto de los detectores de Si (L'Annunziata, 2003). La Figura 3.3 muestra el arreglo experimental típico para la técnica de espectroscopía gamma utilizando como cristal detector el HPGe.

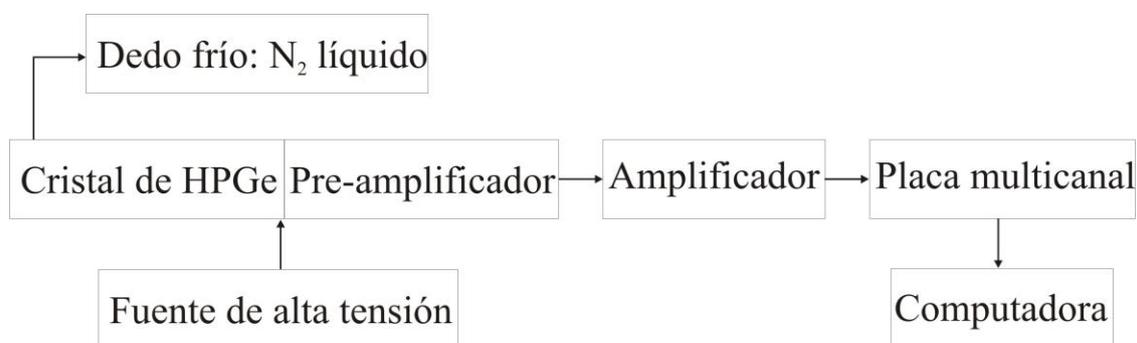


Figura 3.3: Arreglo experimental típico para espectroscopía gamma utilizando cristal de HPGe.

El **crystal semiconductor** del sistema detector está compuesto por dos materiales en contacto, uno tipo p (con exceso de portadores de carga positivos) y uno tipo n (con exceso de portadores de carga negativo). Cuando estos materiales son puestos en contacto, se produce un flujo de cargas positivas hacia el material tipo n y uno de negativas hacia el material tipo p. En la interfase entre las dos superficies se genera lo que se llama zona de depleción, donde los portadores de carga están neutralizados (unión p-n típica de un diodo). Cuando la radiación gamma alcanza la zona de depleción, se crean pares electrón-hueco. Los electrones son colectados y generan un pulso eléctrico, con una altura proporcional a la energía depositada en la zona de depleción. El enfriado del detector con N₂ líquido permite ampliar la zona de depleción proveyendo así mayor volumen sensible al sistema detector.

Cuando un rayo gamma entra al detector interactúa con la materia experimentando uno o varios procesos (Figura 3.4), a saber:

- 1) El fotón incidente interactúa con el cristal mediante efecto Compton y el fotón dispersado escapa del detector.
- 2) El fotón incidente interactúa con el cristal mediante efecto Compton, el fotón dispersado interactúa también por dicho proceso, y así sucesivamente hasta que la energía del fotón dispersado ha bajado lo suficiente como para interactuar mediante efecto fotoeléctrico, depositando toda su energía en el cristal.
- 3) Si el fotón incidente tiene energía suficiente (mayor a 1022 keV) puede conducir a la producción de pares, seguida de la aniquilación del positrón, dispersión Compton una o varias veces y el fotón resultante de la última dispersión interactuar finalmente por efecto fotoeléctrico.
- 4) Luego de promoverse la producción de pares y la aniquilación del positrón, uno de los fotones de aniquilación puede abandonar el detector, y el otro depositar toda su energía en el cristal.
- 5) Luego de la producción de pares y la aniquilación del positrón, ambos fotones podrían escapar del detector.

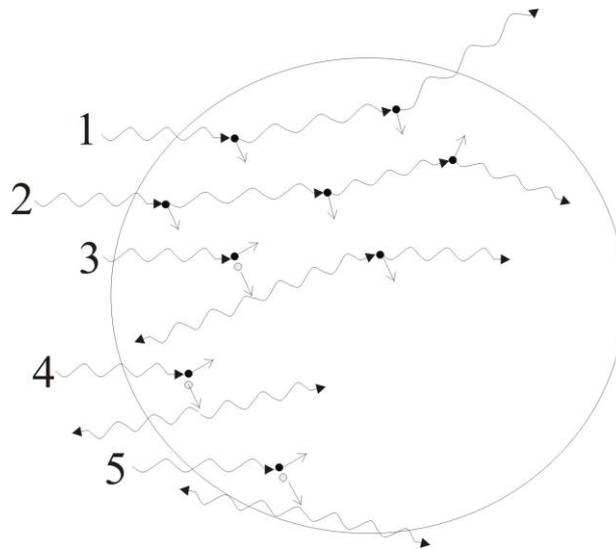


Figura 3.4: Posibles procesos experimentados por fotones incidentes en un detector. Los números corresponden a los procesos explicados en el texto.

La función del **preamplificador** es amplificar las señales débiles sin distorsionarlas. Debido a que la señal de entrada al preamplificador es muy débil, este debe ser montado lo más cerca posible del cristal. De esta manera se reduce la influencia de los campos magnéticos externos y la capacitancia del cable, factores que empeoran la relación señal - ruido. La Figura 3.5 muestra un detector de HPGe acoplado a un pre-amplificador.

Por su parte, el **amplificador** tiene dos funciones primarias; amplificar los pulsos provenientes del preamplificador y conformar el pulso. Al transformar la señal, el amplificador debe conservar la información relacionada con la radiación incidente, así, debe mantener una proporcionalidad estricta entre los pulsos de entrada y salida. Por lo tanto, el amplificador utilizado debe ser lineal.

El **Analizador Multicanal** (MCA de su nombre en inglés *Multichannel Analyzer*) analiza la altura de pulso proveniente del amplificador y según la altura los clasifica en diferentes categorías llamadas canales. El MCA acumula separadamente el número de pulsos en cada canal, generando así el espectro gamma buscado; número de cuentas por canal. El número de canal está relacionado linealmente con la energía depositada en el detector y el número de eventos contados por cada canal con la concentración de los radionucleidos. Para cuantificar la información recabada con el MCA se hace necesario calibrar en energía (transformar canal a energía) y en eficiencia (relacionar el número de eventos por canal con la actividad).

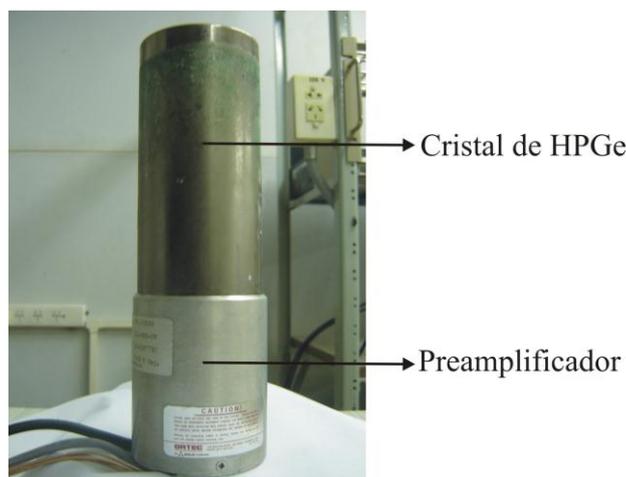


Figura 3.5: Cristal detector HPGe (arriba) unido a preamplificador (abajo).

El sistema detector utilizado para la determinación de la actividad de las muestras contó con un detector de germanio hiperpuro acoplado a un preamplificador, EG&G Ortec GMX10180, junto con una fuente de alta tensión Ortec 659, un amplificador Ortec 572A y una placa multicanal de 8192 canales colocada en una PC. El conjunto cristal preamplificador fue colocado dentro de una cámara limpia de plomo. La tensión inversa de trabajo utilizada fue de 2500 V. La Figura 3.6 muestra el arreglo experimental utilizado.

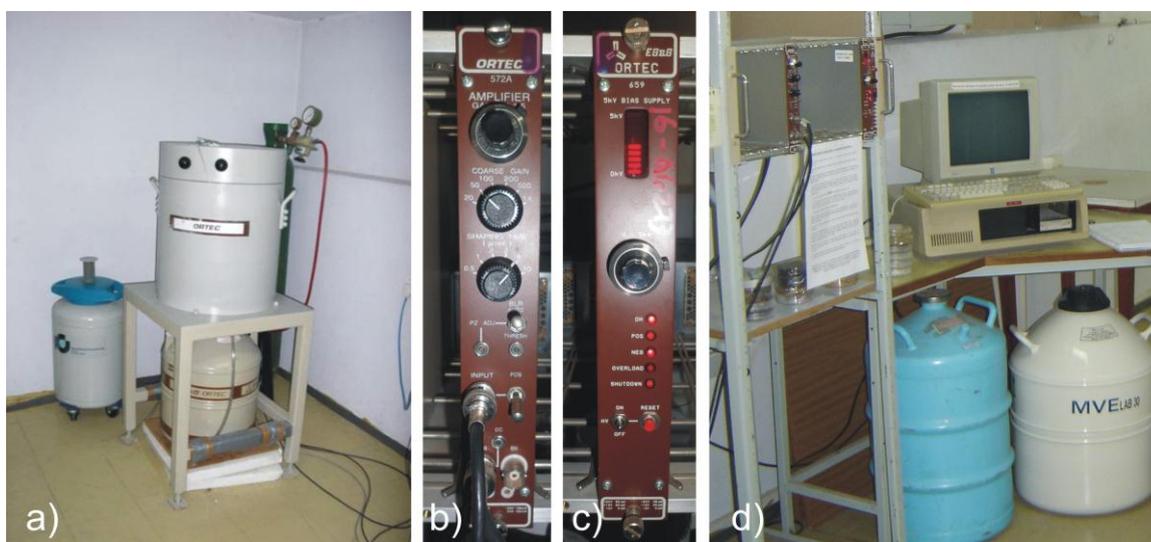


Figura 3.6: a) Cámara limpia de plomo conteniendo el cristal detector y el preamplificador. Por debajo se observa el termo contenedor de nitrógeno líquido. b) Amplificador y c) fuente de alta tensión. En d) se muestra el amplificador y la fuente de alta tensión junto con la PC contenedora del MCA. Por debajo se observan termos contenedores de nitrógeno líquido.

Para el análisis de emisores gamma, cada una de las muestras de suelo fue secada a 90°C en un horno, molida y tamizada con tamiz de 2 mm, para luego ser almacenadas en portamuestra tipo Marinelli desarrollado por técnicos del Instituto de Física La Plata (Figura 3.7). El tiempo de

almacenamiento de las muestras envasadas fue de al menos 3 semanas, para asegurar el equilibrio secular de las cadenas naturales.

Cada una de las muestras de arcilla separadas para el análisis textural (para un detalle del método de separación ver Sección 3.4.5) fue secada a 90°C y almacenadas en portamuestra plástico. En este caso sólo se analizaron las actividades del ^{137}Cs y ^{40}K , con lo que no fue necesario esperar que se alcanzara el equilibrio secular.

Los espectros de las muestras de suelo fueron tomados durante 4 días mientras que los de las muestras de arcilla durante 7 días.

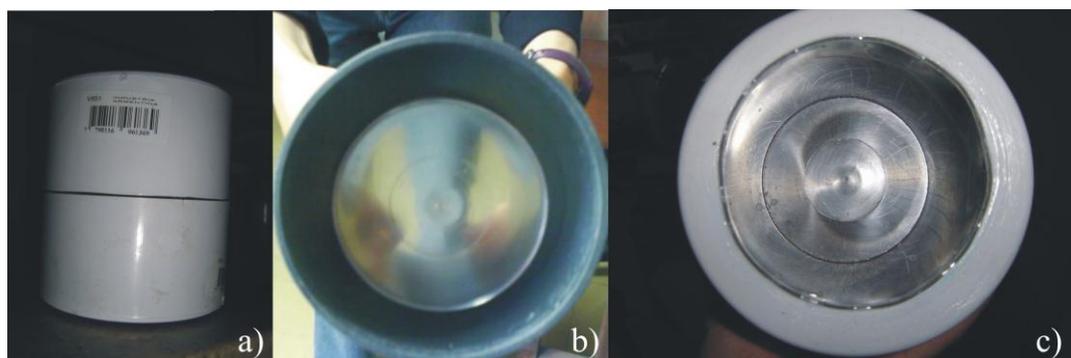


Figura 3.7: Portamuestra tipo Marinelli a) vista lateral, b) vista transversal interna y c) vista transversal inferior.

Las calibraciones en energía del sistema detector fueron realizadas utilizando fuentes puntuales de ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{133}Ba y ^{152}Eu , lográndose abarcar un intervalo de energía de 80 keV a 1500 keV, aproximadamente. La Figura 3.8 a) muestra una curva típica de calibración en energía.

Para la obtención de la calibración en eficiencia se utilizó el método descrito por Perillo et al., 1997. La metodología consiste en agregar a la muestra bajo estudio (suelo en este caso) cantidades conocidas de óxido de lantano (La_2O_3) y óxido de lutecio (Lu_2O_3), que contienen de manera natural actividades conocidas de ^{138}La y ^{176}Lu , respectivamente. El ^{138}La y el ^{176}Lu emiten rayos gamma en un amplio intervalo de energía y sus esquemas de decaimiento son relativamente sencillos. Además, debido a la baja actividad de los óxidos no son considerados radioactivos y no se requiere de permisos especiales para su manipulación.

Previo a la adición a la muestra de suelo, los óxidos deben secarse en horno (90 °C) hasta alcanzar masa constante, ya que son altamente higroscópicos. Una vez que fueron secados y que su masa se determinó con precisión, se agregan a la muestra de suelo, teniendo especial cuidado en que queden distribuidos en forma homogénea en la matriz.

Una vez preparada la muestra con la misma geometría que las muestras a analizar, se tomó un espectro durante 4 días y se utilizó un programa comercial para la determinación de la curva de

eficiencia, considerando los rayos gamma presentados en la Tabla 3.2. Dadas las energías de los rayos gamma involucrados y la matriz en la que están inmersos los óxidos (suelo) se deben considerar efectos de autoabsorción. Los coeficientes utilizados para corregir las eficiencias para cada energía se presentan en la Tabla 3.2. Las actividades específicas de cada radionucleido, necesaria para calcular la actividad real de los óxidos agregados, se resume en la Tabla 3.2. Una curva típica de calibración en eficiencia se muestra en la Figura 3.8 b). Como puede verse existen dos regiones de comportamiento diferente para la eficiencia, el punto de transición de un comportamiento a otro se denomina *knee*.

Tabla 3.2: Características radiológicas de los óxidos La_2O_3 y Lu_2O_3 utilizados para la fabricación de la muestra patrón.

Compuesto	Radionucleido	Actividad específica (Bq/g)	Principales rayos γ	Corrección por autoabsorción
Lu_2O_3	^{176}Lu	42±2	88,35	1,30
			201,82	1,21
			306,88	1,13
La_2O_3	^{138}La	0,68±0,02	788,74	-
			1435,79	-

Para asegurar que los efectos de autoabsorción fueran iguales para todas las muestras, se llevó a cabo un experimento que permitió determinar el coeficiente de atenuación lineal de diferentes muestras utilizando un detector de NaI(Tl) y una fuente de ^{137}Cs . Los resultados obtenidos del coeficiente de atenuación lineal para las muestras estudiadas de cada perfil no mostraron diferencias significativas, por lo que se puede considerar que los efectos de autoabsorción en cada una de ellas son similares. (Montes et al., 2008).

Si bien el detector utilizado se encuentra dentro de una cámara limpia de plomo, hay una probabilidad no nula de que los rayos gamma provenientes del decaimiento radioactivo de radionucleidos presentes en el laboratorio atraviesen la cámara e interactúen con el detector. Este hecho, junto con el ruido electrónico del sistema detector, hace que en ausencia de una muestra a analizar el espectro obtenido presente picos de área no despreciable a determinadas energías. Este espectro es lo que se llama fondo del laboratorio. Por este motivo, todas las mediciones realizadas (en esas mismas condiciones) deben ser corregidas considerando el fondo del laboratorio en el cual debe ser determinado de manera experimental. La medición del fondo fue realizada colocando sobre el detector un portamuestra tipo Marinelli vacío. El tiempo de adquisición fue de 7 días. La Figura 3.8 c) presenta un fondo típico del laboratorio.

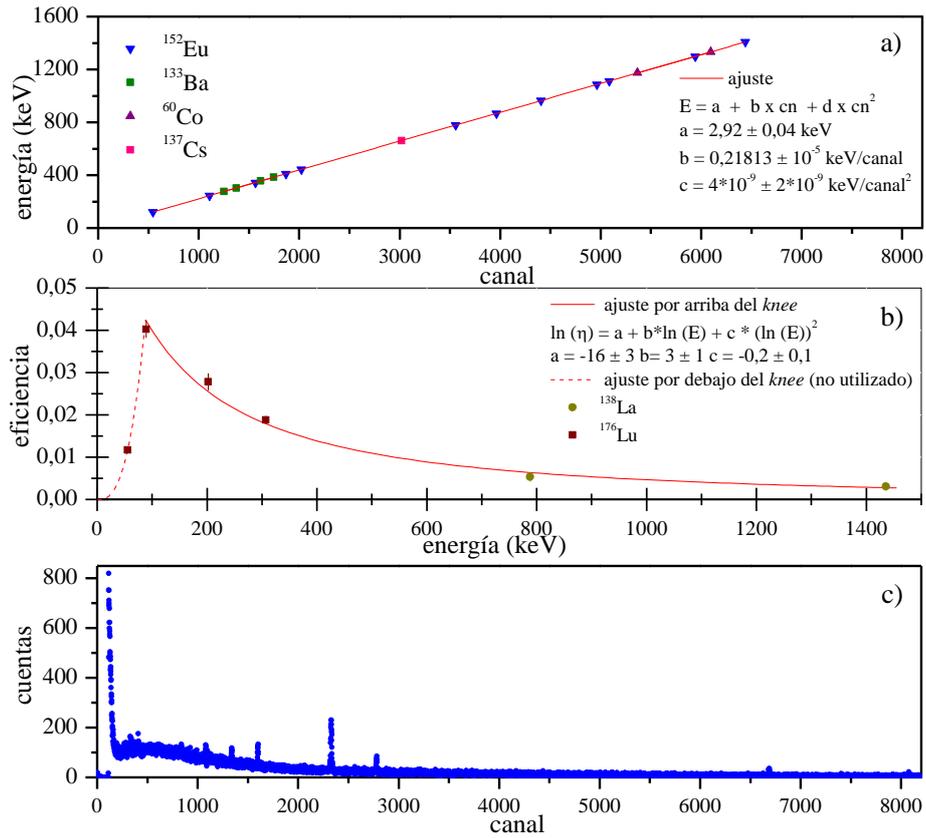


Figura 3.8: Curvas típicas de a) calibración en energía, b) calibración en eficiencia y c) fondo del laboratorio para un detector HPGe.

Para determinar la actividad específica, A , a partir del fotopico de energía E generado por el decaimiento j de un radionucleido presente en una muestra de masa m se utiliza la expresión (3.1):

$$A = \frac{c - f}{P_\gamma \eta(E) t m} \pm \left\{ \left(\frac{1}{P_\gamma \eta(E) t m} \right)^2 \left[\sigma_c^2 + \sigma_f^2 + \frac{c - f}{\eta(E)} \right] \sigma_\eta^2 \right\}^{1/2} \quad (3.1)$$

donde c representa el número de cuentas totales para la energía E , f las cuentas para esa misma energía debidas al fondo del laboratorio, P_γ la probabilidad de que se produzca el decaimiento j , $\eta(E)$ la eficiencia del detector para la energía E determinada para la misma geometría y matriz que la muestra y t el tiempo de medida, mientras que σ_c , σ_f y σ_η representan los errores asociados a las cuentas totales, a las cuentas en el fondo y a la eficiencia, respectivamente.

Dado que el ^{40}K y el ^{137}Cs tienen sólo un rayo gamma asociado, sus actividades se calculan directamente de la expresión (3.1), utilizando las correspondientes probabilidades de emisión gamma, eficiencia y cuentas de fondo.

Sin embargo, la determinación de la actividad de la cadena del ^{238}U (^{226}Ra) y de la cadena del ^{232}Th requiere algo de cuidado. La elección de los fotopicos utilizados en el cálculo de dichas actividades requirió analizar la superposición entre las energías emitidas por todos los radionucleidos naturales y antropogénicos que potencialmente pueden encontrarse en las muestras. La Tabla 3.3 resume las superposiciones posibles y así, los fotopicos que no pueden ser utilizados para el cálculo de la actividad de las cadenas.

Para el caso de la cadena del ^{232}Th , los radionucleidos útiles para el cálculo de la actividad son el ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{212}Bi y ^{208}Tl , considerando para los últimos dos la ramificación de la cadena y suponiendo equilibrio secular.

Por su parte, el rayo gamma emitido por el ^{226}Ra a 185,99 keV se superpone con el emitido por el ^{235}U (185,72 keV). Por lo tanto, para la determinación de la actividad de la cadena del ^{238}U (^{226}Ra), se utilizan rayos gamma emitidos por el ^{214}Pb y el ^{214}Bi , suponiendo equilibrio secular de la cadena. La Tabla 3.4 muestra todos los rayos gamma utilizados para el cálculo de las correspondientes actividades.

Tabla 3.3: Superposición de energías de los emisores gamma estudiados. R1 y R2 indican los radionucleidos analizados mientras que E1 y E2 sus energías, C1 y C2 hacen referencia a las cadenas a las que pertenecen.

R1	C1	R2	C2	E1	E2
^{228}Ac	^{232}Th	^{234}Pa	^{238}U	154,20	152,70
^{228}Ac	^{232}Th	^{223}Ra	^{235}U	154,20	154,30
^{228}Ac	^{232}Th	^{223}Ra	^{235}U	270,30	269,60
^{228}Ac	^{232}Th	^{219}Rn	^{235}U	270,30	271,23
^{228}Ac	^{232}Th	^{227}Th	^{235}U	328,00	329,82
^{228}Ac	^{232}Th	^{223}Ra	^{235}U	338,40	338,60
^{228}Ac	^{232}Th	^{210}Tl	^{238}U	794,80	795,00
^{228}Th	^{232}Th	^{231}Th	^{235}U	84,40	84,21
^{228}Th	^{232}Th	^{234}Pa	^{238}U	131,62	131,28
^{224}Ra	^{232}Th	^{214}Pb	^{238}U	241,00	241,92
^{212}Pb	^{232}Th	^{231}Pa	^{238}U	300,09	300,08
^{212}Bi	^{232}Th	^{214}Pb	^{238}U	785,42	785,95
^{208}Tl	^{232}Th	^{214}Pb	^{238}U	583,14	580,30
^{208}Tl	^{232}Th	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	^{238}U	763,13	765,00
^{235}U	^{235}U	^{223}Ra	^{235}U	143,76	144,30
^{235}U	^{235}U	^{226}Ra	^{238}U	185,72	185,99
^{235}U	^{235}U	^{230}Th	^{238}U	143,76	143,60
^{231}Pa	^{235}U	^{227}Th	^{235}U	330,07	329,82
^{231}Pa	^{235}U	^{234}Pa	^{238}U	152,70	154,30
^{223}Ra	^{235}U	^{219}Rn	^{235}U	269,60	271,23
^{223}Ra	^{235}U	^{230}Th	^{238}U	144,30	143,60
^{211}Bi	^{235}U	^{214}Pb	^{238}U	351,00	351,99
^{211}Po	^{235}U	^{234}Pa	^{238}U	569,65	569,26
^{207}Tl	^{235}U	^{234}Pa	^{238}U	897,80	898,60
^{234}Th	^{238}U	^{234}Th	^{238}U	92,38	92,80
$^{234\text{m}}\text{Pa}$	^{238}U	^{227}Th	^{235}U	236,00	236,00
$^{234\text{m}}\text{Pa}$	^{238}U	^{227}Th	^{235}U	255,00	256,25

Tabla 3.4: Energías utilizadas para el cálculo de la actividad de las cadenas naturales, del ^{40}K y del ^{137}Cs . El código E_i es indicativo del rayo gama considerado.

Cadena	Radionucleido	Energía (keV)	Código
^{238}U	^{214}Pb	351,99	E1
		295,22	E2
	^{214}Bi	609,32	E3
		1120,28	E4
^{232}Th	^{228}Ac	911,07	E5
		968,90	E6
	^{212}Pb	238,63	E7
	^{212}Bi	727,17	E8
	^{208}Tl	583,14	E9
		860,47	E10
-	^{40}K	1460,64	E11
-	^{137}Cs	661,62	E12

Así, la actividad de la cadena del ^{238}U (^{226}Ra) se determina según:

$$Ac(^{226}\text{Ra}) = \frac{A_{E1} + A_{E2} + A_{E3} + A_{E4}}{4} \quad (3.2)$$

donde A_{E1} , A_{E2} , A_{E3} y A_{E4} son las actividades determinadas según la ecuación (3.1) para las energías E1, E2, E3 y E4, respectivamente (ver Tabla 3.4).

Para determinar el error asociado a la actividad del ^{226}Ra se realizó la correspondiente propagación de error, suponiendo una correlación total positiva entre las actividades de los radionucleidos:

$$\sigma_{A(^{226}\text{Ra})}^2 = \frac{1}{8} \left(\frac{\sigma_1^2 + \sigma_2^2 + \sigma_3^2 + \sigma_4^2}{2} + \sigma_1\sigma_2 + \sigma_1\sigma_3 + \sigma_1\sigma_4 + \sigma_2\sigma_3 + \sigma_2\sigma_4 + \sigma_3\sigma_4 \right) \quad (3.3)$$

donde los σ_i son los errores calculados utilizando la ecuación (3.1) para la actividad determinada del fotopico de energía E_i .

Por su parte, la actividad de la cadena del ^{232}Th se determina según:

$$A(^{232}\text{Th}) = \frac{1}{6} (A_{E5} + A_{E6} + A_{E9} + A_{E10}) + \frac{1}{3} (A_{E7} + A_{E8}) \quad (3.4)$$

donde A_{Ei} representa la actividad determinada a partir de la ecuación (3.1) para el fotopico de energía Ei . Nuevamente, realizando la propagación de errores correspondiente, suponiendo correlación total positiva entre las actividades, se obtiene que:

$$\begin{aligned} \sigma_{A(232Th)}^2 &= \frac{1}{36}(\sigma_5^2 + \sigma_6^2 + \sigma_9^2 + \sigma_{10}^2) + \frac{1}{9}(\sigma_7^2 + \sigma_8^2) + \dots \\ &\dots + \frac{1}{8}(\sigma_5\sigma_6 + \sigma_5\sigma_9 + \sigma_5\sigma_{10} + \sigma_6\sigma_9 + \sigma_6\sigma_{10} + 4\sigma_7\sigma_8 + \sigma_9\sigma_{10}) + \dots \quad (3.5) \\ &\dots + \frac{1}{4}(\sigma_5\sigma_7 + \sigma_5\sigma_8 + \sigma_6\sigma_7 + \sigma_6\sigma_8 + \sigma_7\sigma_9 + \sigma_7\sigma_{10} + \sigma_8\sigma_9 + \sigma_8\sigma_{10}) \end{aligned}$$

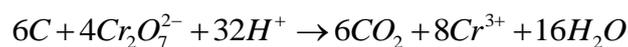
donde los σ_i son los errores calculados utilizando la ecuación(3.1) para la actividad determinada del fotopico de energía E_i .

3.4 Técnicas complementarias utilizadas para el estudio del suelo

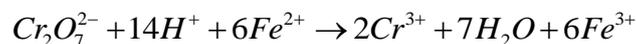
3.4.1 Medición del carbono orgánico (Dicromatovolumetría)

El método utilizado para la determinación del carbono orgánico es el de Walkley Black (Dicromatovolumetría), basado en la oxidación del carbono presente en exceso de dicromato de potasio ($K_2Cr_2O_7$, patrón primario). En general, en los suelos no se encuentra carbono inorgánico y se puede suponer que el carbono total es igual al carbono orgánico. El agente oxidante utilizado es el dicromato de potasio ($K_2Cr_2O_7$), cuyo Cr^{6+} en medio ácido se oxida a Cr^{3+} llevando el carbono orgánico a dióxido de carbono.

Así, durante la reducción del dicromato de potasio en medio ácido en presencia de carbono se obtiene:



El exceso de dicromato de potasio (que no reaccionó con el carbono orgánico de la muestra) se valora utilizando sulfato amónico ferroso o sal de Mohr ($Fe(NH_4)_2(SO_4)_2 \cdot 6H_2O$; previamente valorada con $K_2Cr_2O_7$) en presencia de un indicador según la reacción:



Cuando todo el dicromato de potasio reaccionó con la sal de Mohr, se alcanza el punto final y el indicador (ferroina) cambia su color. En su forma reducida, Fe^{2+} , el indicador presenta un color rojo intenso que cambia bruscamente a color azul cuando se oxida a Fe^{3+} (Fischer y Peters, 1971; Skoog y West, 1974).

Finalmente se calcula el % de carbono orgánico como:

$$\% C_{org} = [(V_D N_D) - (V_S N_S)] 1,2 \frac{12}{4000} \frac{100}{m} \quad (3.6)$$

donde m es la masa de suelo utilizada y V_D y V_S los volúmenes (en mL) utilizados de las soluciones de dicromato de potasio (de normalidad N_D expresado en meq/mL) y de sal ferrosa (de normalidad N_S expresado en meq/mL), respectivamente. El factor 1,2 se debe a que la reacción química entre el dicromato de potasio y el carbono orgánico no es completa. Si bien Walkley Black propone un factor de 1,33 o algún otro que sea representativo del tipo de suelo estudiado (Claver, 1971), Richter et al., 1975 proponen un factor de 1,2 para suelos de la llanura pampeana, que es el utilizado en este trabajo. El término $12/4000$ corresponde al peso equivalente del carbono expresado en g/meq.

Para la determinación del % de C_{org} en el suelo, las muestras seleccionadas fueron secadas a 90°C , molidas y tamizadas. La masa de suelo utilizada varió según la concentración esperada de C_{org} . Para muestras con un porcentaje del orden del 5 % de C_{org} se utilizó una masa de aproximadamente 0,5 g, mientras que para aquellas muestras donde el valor esperado era relativamente bajo se utilizó una masa mayor, no superando en ningún caso 1 g de muestra.

3.4.2 Determinación de pH

El pH de la solución del suelo puede variar ampliamente, entre 2 o menos en suelos ácidos y 9 o más en suelos alcalinos. El pH está fuertemente relacionado con la presencia y concentraciones relativas de iones de Ca y Na, quienes afectan la estructura del suelo (Hillel., 1998).

Para la determinación del pH en el presente trabajo se utilizó el método estandarizado SA06 (United Nations Economic Commission for Europe Convention on long-range Transboundary Air Pollution, 2006), con excepción que las muestras fueron secadas a 90°C . Luego del secado las muestras fueron molidas, tamizadas y colocadas en contenedor plástico, donde se añadió agua destilada en una relación 5:1 en volumen. El pH fue determinado mediante un pH-metro TERMO/pH-metro de mesada ALTRONIX TPX – III (previamente calibrado), que también permite determinar la temperatura de medición. Las muestras analizadas se prepararon por duplicado.

3.4.3 Caracterización magnética

El estudio de parámetros magnéticos de matrices ambientales se ha vuelto un tema de interés debido a que el Fe es un elemento muy común en la corteza terrestre y porque es experimentalmente fácil detectar señales magnéticas, aun cuando el componente magnético esté en una concentración menor de la milésima parte de toda la muestra (Evans y Heller, 2003). Dentro de los parámetros magnéticos relevantes en el estudio de matrices ambientales se puede mencionar la magnetización (M), la susceptibilidad magnética de alto campo (χ_{hifi}), la magnetización de saturación (M_s), la magnetización de remanencia (M_r) y el campo coercitivo (H_c).

Para la determinación de dichos parámetros se pueden llevar a cabo medidas de ciclos de histéresis y de susceptibilidad magnética AC (determinación de la variación de la magnetización con respecto a un campo aplicado variable en el tiempo) como función de la temperatura.

A partir del ciclo de histéresis se pueden obtener 4 parámetros: susceptibilidad de alto campo (χ_{hifi}), magnetización de saturación (M_s), campo coercitivo (H_c) y magnetización de remanencia (M_r). Si a pesar de aplicar un campo relativamente alto al sistema, este no satura, entonces la muestra contiene materiales paramagnéticos. La pendiente que presenta la curva de magnetización en esa región es la denominada susceptibilidad de alto campo. En las muestras con un comportamiento magnético mixto, se debe corregir esta contribución para la obtención de los otros 3 parámetros (M_s , H_c y M_r). La magnetización de saturación es el valor de magnetización que se obtiene para el campo saturante. Su valor podría indicar cuál es el mineral magnético dominante en la matriz ambiental. En el Capítulo 1 se presentaron los valores de M_s para los minerales más frecuentes encontrados en suelos. Este parámetro depende de la concentración de los materiales magnéticos. La magnetización de remanencia es el valor de magnetización cuando el campo aplicado es cero, mientras que el campo coercitivo es el campo necesario para que la magnetización de la muestra sea nula. Cuanto mayor es este parámetro más dura, magnéticamente hablando, es la muestra (Evans y Heller, 2003).

Las muestras de suelo para realizar este análisis fueron tomadas en tubos plásticos, secadas a 90°C, molidas y tamizadas. Cada una de las muestras fue colocada en un porta muestra plástico diamagnético, cuya respuesta magnética puede despreciarse. Las medidas se realizaron con un magnetómetro de muestra vibrante LakeShore 7404.

El ciclo de histéresis fue obtenido entre campos aplicados de -1,2 T y 1,2 T. La susceptibilidad magnética de alto campo se determinó utilizando una aproximación lineal para la parte de alto campo de los ciclos de histéresis. Los tres parámetros restantes fueron estimados gráficamente, ya que la inhomogeneidad de la muestra no permitió realizar un ajuste de los ciclos.

Las medidas de susceptibilidad magnética AC en función de la temperatura (llevadas a cabo entre 15 K y 325 K) fueron realizadas utilizando un susceptómetro LakeShore 7130, aplicando un campo alterno de 0,1 mT y frecuencia de 825 Hz.

3.4.4 Análisis Hiperfino: espectroscopia Mössbauer

La espectroscopia Mössbauer se basa en la absorción resonante libre de retroceso de radiación gamma por parte de un núcleo. Fue descubierta por Rudolf L. Mössbauer en 1957, quien obtuvo el premio Nobel por su descubrimiento (Greenwood y Gibb, 1971). Es una técnica muy poderosa que

permite estudiar las interacciones hiperfinas del núcleo sonda, en este caso Fe, presente en la muestra con su entorno.

Cuando el núcleo absorbente está inmerso en un cristal, la interacción del núcleo con el entorno produce modificaciones de los niveles nucleares. Entre los parámetros hiperfinos obtenidos del análisis de un espectro Mössbauer se pueden encontrar: el corrimiento isométrico (δ), el desdoblamiento cuadrupolar (Δ) o corrimiento cuadrupolar (ϵ) y el campo magnético hiperfino (H).

El corrimiento isométrico (δ) se debe a la interacción coulombiana del núcleo con los electrones s. Estos electrones tienen una probabilidad no nula de encontrarse en el núcleo y cuando esto ocurre producen un cambio en los niveles energéticos del mismo. El corrimiento isométrico dependerá de la diferencia entre la densidad de electrones en los núcleos sonda y absorbente y de la diferencia de radios entre el estado excitado y el fundamental. Para el núcleo de Fe, el radio del estado excitado es menor que el radio del estado fundamental. Así, si la densidad de electrones s en el absorbente es menor que la densidad de electrones s en la fuente, el corrimiento isométrico será mayor a cero. El corrimiento isométrico permite determinar el estado de oxidación del átomo del núcleo absorbente. En el caso del Fe, el Fe^{2+} tiene un mayor apantallamiento de los electrones s, es decir, una menor función de densidad probabilidad de dichos electrones en el núcleo y como resultado presenta un corrimiento isométrico alto. Corrimientos isométricos menores a 0,75 mm/s indican que el Fe se encuentra como Fe^{3+} , mientras que si son mayores a dicho valor se encuentra como Fe^{2+} (ver Figura 3.9).

El desdoblamiento cuadrupolar se debe a la interacción del momento cuadrupolar nuclear con un gradiente de campo eléctrico no nulo en el sitio de la sonda. El origen del gradiente de campo eléctrico puede deberse a que los vecinos se encuentren ubicados en una red no cúbica y a la distribución de carga no simétrica de los electrones de valencia. Cuando el ion de Fe se encuentra en un cristal, interactúa electrostáticamente con sus vecinos y se modifican sus estados energéticos por la interacción coulombiana y si la red no es cúbica se producirá el desdoblamiento de los niveles de energía nucleares. Como resultado, el espectro Mössbauer estará compuesto por un doblete. Como puede verse de la Figura 3.9 no existe correlación entre el desdoblamiento cuadrupolar y el estado de oxidación cuando si lo existe para el corrimiento isométrico.

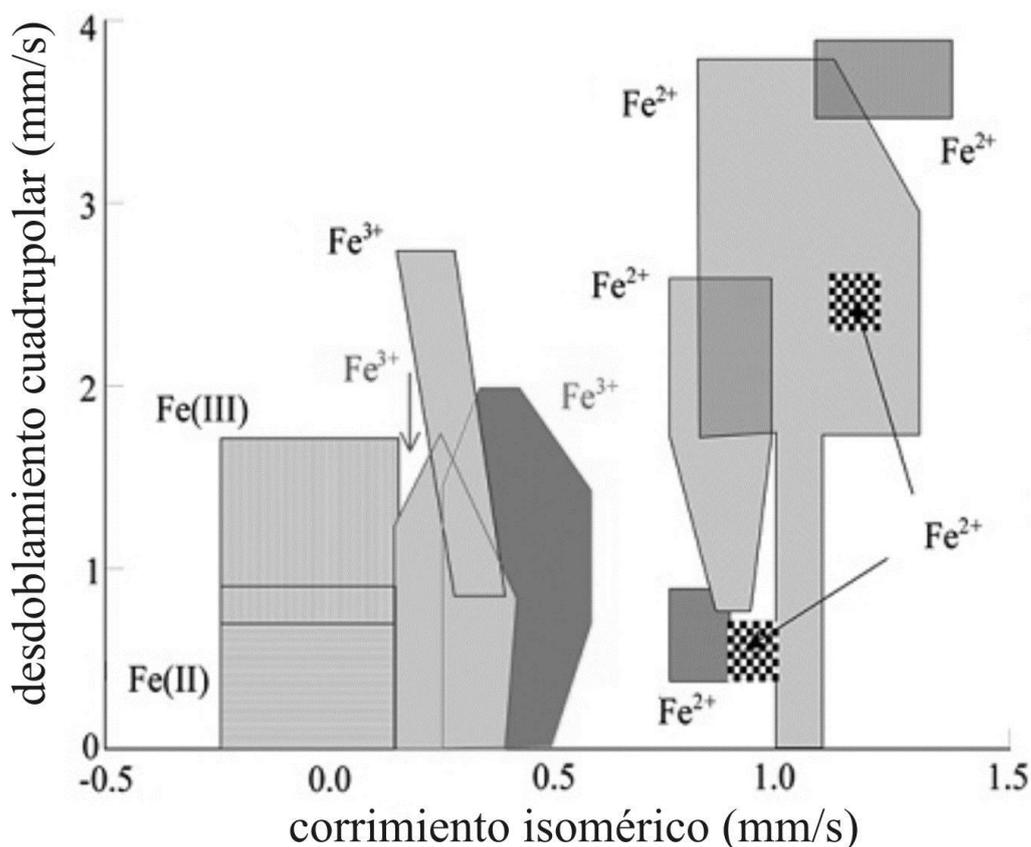


Figura 3.9: Estados de oxidación del Fe según corrimiento isomérico para distintos desdoblamientos cuadrupolares (Murad, 2010).

La interacción entre el momento dipolar magnético del núcleo y un campo magnético local o aplicado en el núcleo producirá un desdoblamiento magnético de los niveles nucleares. El campo magnético efectivo tiene varias contribuciones pero, en ausencia de un campo magnético externo relativamente alto, la contribución más importante se debe al desbalance de electrones spin hacia abajo y hacia arriba en el átomo absorbente. En el caso del Fe, se produce un desdoblamiento del nivel p y del d que da como resultado en el espectro Mössbauer 6 líneas de absorción.

La presencia simultánea de interacciones cuadrupolares y magnéticas da como resultado un espectro relativamente complejo. En los casos que el desdoblamiento cuadrupolar es pequeño comparado con el desdoblamiento magnético, el desdoblamiento cuadrupolar se trata como una perturbación de primer orden a la interacción magnética y se denomina corrimiento cuadrupolar, ϵ .

Como se mencionó en el Capítulo 1, los suelos contienen minerales de arcillas, óxidos de Fe y otros minerales. Por lo tanto los espectros Mössbauer que pueden esperarse de este tipo de muestras pueden estar compuestos de dobletes de Fe³⁺ de minerales arcillosos y otros silicatos y óxidos superparamagnéticos, dobletes de Fe²⁺ de minerales de arcillas y sextetes de Fe³⁺ de óxidos de Fe ordenados magnéticamente, entre otros. A partir de los parámetros obtenidos del ajuste a los espectros Mössbauer utilizando un método de ajuste por cuadrados mínimos, puede realizarse un

análisis cualitativo y cuantitativo de los mismos (Vandenberghe, 1991). El primero consta en determinar las fases de Fe presentes en la muestra y el segundo determinar la fracción relativa de cada una de las fases. El análisis cualitativo de suelos se lleva a cabo comparando los parámetros hiperfinos de los sitios propuestos con aquellos de minerales de referencia (Murad, 2010).

El análisis utilizando espectroscopía Mössbauer se realizó tanto para suelos y como para arcillas. Las muestras de suelo fueron tomadas en tubos plásticos, secadas a 90°C, molidas y tamizadas, mientras que las muestras de arcilla fueron obtenidas de la separación realizada para la determinación de la textura. Todas las muestras fueron colocadas en contenedor plástico, utilizando una masa de alrededor de 300 mg, quedando un espesor lo suficientemente fino para minimizar la absorción no resonante y lo suficientemente grueso para que haya una cantidad suficiente de átomos resonantes.

Se utilizó la espectroscopia Mössbauer de transmisión. Las medidas se realizaron con un espectrómetro convencional con 512 canales y aceleración constante, con una fuente de $^{57}\text{CoRh}$ con una actividad nominal de aproximadamente 10 mCi. La calibración en velocidad fue realizada con una lámina de $\alpha\text{-Fe}$ de 12 μm de espesor. Para mayores detalles ver Greenwood y Gibb, 1971.

Dado que las muestras estudiadas no son homogéneas, el ajuste de los espectros fue realizado con líneas Voiteanas y fueron analizados numéricamente usando un programa que admite distribuciones tanto de los campos magnéticos hiperfinos como de los desdoblamientos cuadrupolares (Lagarec y Rancourt, 1998).

3.4.5 Análisis granulométrico: determinación de la textura y la clase textural

El método para la determinación de la textura se basa en la separación de las partículas por su tamaño y permite determinar el porcentaje en peso de las fracciones arcilla, arena y limo. La fracción arena se separa por medio del filtrado, mientras que para la determinación de las otras dos fracciones se utiliza el método de sedimentación, basado en la medición de la velocidad de deposición relativa de partículas de distintos tamaños en una suspensión acuosa. Se supone que la partícula esférica de radio r cae a velocidad constante (régimen crítico) y que las fuerzas que actúan sobre ella son la fuerza viscosa (ley de Stokes bajo flujo laminar), la gravitatoria y el empuje.

Dado que en el suelo hay partículas aglomeradas (agregados) es necesario un pre-tratamiento para separarlas. Para esto se debe realizar una dispersión química, eliminación de agentes cementantes (como carbonatos y materia orgánica) y dispersión física (separación por mezclado turbulento) (Claver, 1971).

Para el análisis textural se escogieron 3 muestras por cada perfil de suelo: una superficial, aquella con máxima actividad de ^{137}Cs (ver Capítulo 4) y la más profunda. Cada una de las muestras fue secada a 90 °C, molida, tamizada con tamiz de 2 mm. Para la eliminación de los agentes cementantes se agregó agua oxigenada 100 volúmenes en caliente (repetiendo hasta no observar ningún tipo de reacción) para luego lavar con agua destilada. La dispersión química fue realizada con 50 ml de Calgón (hexametáfosfato de sodio y carbonato de sodio), seguida de una dispersión física, agitando mecánicamente durante 5 minutos.

Para la separación de la fracción gruesa (arena y grava) de la fracción fina (limo y arcilla) se realizó un tamizado por vía húmeda con un tamiz de 0,063 mm. La fracción gruesa fue secada y pesada. La fracción fina (limo y arcilla) fue recogida y re-suspendida dentro de una probeta de sedimentación. Posteriormente se procedió a tomar alícuotas a distintos tiempos y distintas profundidades para el análisis de la composición de la fracción fina (porcentaje de limo y arcilla). La muestra así colectada fue secada y pesada. Finalmente, haciendo uso del triángulo de clases texturales se determinó la clase textural de cada muestra.

3.4.6 Análisis mineralógico: Difracción de Rayos X

La Difracción de Rayos X es una técnica que provee información detallada de las estructuras de sustancias cristalinas, siendo una herramienta poderosa para la identificación de minerales en rocas y suelos (Drees y Ulery, 2008).

Cuando un haz de rayos X incide sobre un arreglo de átomos, estos actúan como centros dispersores. Debido al arreglo ordenado de los átomos en el cristal, los rayos X dispersados resultan en fase sólo en direcciones específicas, según la simetría y el espaciado atómico, interfiriendo constructivamente y dando como resultado un patrón de difracción. La relación que expresa la condición para que ocurra la difracción es la ley de Bragg:

$$2d \sin \theta = n \lambda \quad (3.7)$$

donde n es un número entero, d es el espacio entre planos sucesivos, λ la longitud de onda de la radiación y θ el ángulo formado entre los planos y la radiación (Cullity y Stock, 2001). La técnica consiste en determinar la radiación dispersada para un intervalo determinado de ángulos, obteniéndose un difractograma o patrón de difracción.

Los difractogramas obtenidos de las muestras crudas mostraron que la identificación de fases presentes puede ser muy difícil, debido a la dilución de algunos minerales, a la superposición de los picos de difracción de diferentes fases y otros efectos provocados por la presencia de los minerales de la fracción gruesa. Por lo tanto, y debido al hecho que el Cs se aloja preferentemente en las

arcillas, lo conveniente es analizar mediante DRX las muestras separadas según el tamaño de partícula (Drees y Ulery, 2008).

Las distancias interplanares de los minerales más comunes que componen la fracción arcilla son, en muchos casos, similares y no pueden resolverse sencillamente mediante la técnica de DRX. Además, el suelo comúnmente contiene filosilicatos expandibles, que se caracterizan por que los espaciados entre planos cristalinos varían con la presencia de distintos cationes en los minerales. La variación del espaciado depende del balance entre las fuerzas expansivas y contractivas dentro de la región intercapa hidratada del mineral por lo que para realizar la identificación de fases se requiere del control del catión saturante. (Drees y Ulery, 2008).

Por lo expuesto anteriormente, es necesario realizar distintos pre-tratamientos a las muestras de la fracción de arcilla separadas. Los pre-tratamientos a realizar son la saturación de la fracción de arcilla con un catión determinado, sea Mg o K, la saturación con glicol y la calcinación.

Las muestras crudas fueron estudiadas utilizando un difractómetro Philips PW1710 (radiación $\text{CuK}\alpha$) en la geometría Bragg – Brentano, con un modo de colección de $0,02^\circ$, 1 s por paso, con 2θ en el rango de 10° a 100° . Los difractogramas fueron analizados usando el programa PoweredCell (Kraus, 1999) y los datos estructurales fueron tomados de la base de datos americana de estructuras cristalinas (Downs y Hall Wallace 2003).

Las muestras de arcilla separadas mediante el análisis textural fueron homoionizadas con Mg, para luego tomar sub-muestras para la saturación con glicol y la calcinación a 550°C . Los difractogramas fueron obtenidos con un Sistema de Difractometría de Rayos X marca PANalytical, modelo X'Pert PRO de alta resolución, de óptica pre-alineada, configurado theta-theta, generador integrado de rayos X, tubo de rayos X metal-cerámico con ánodo de Cu ($\lambda = 1.54\text{nm}$), controlador, goniómetro de alta resolución, monocromador curvo de grafito, detector de centelleo, ranuras de divergencia, recepción y anti-dispersión, filtro. El modo de colección utilizado fue de $0,02^\circ$, 0,4 s por paso, con 2θ en el rango de 3° a 32° . Los difractogramas de la muestra calcinada fueron tomados hasta 15° , dado que los mismos serán empleados para estudiar el pico de la caolinita, localizado cerca de 9° .

La identificación de los minerales fue hecha acorde a Claver, 1971 (ver Capítulo 3) y para el análisis semi-cuantitativo se utilizó el método de Foscolos et al., 1976. El fondo fue modelado con una función Gaussiana centrada en cero y las áreas de los picos de interés fueron estimadas ajustando los picos con el mismo tipo de función.

Bibliografía

- Claver, R., 1971. Procedure in sedimentary Petrology, Wiley Interscience. New York.
- Cullity, B.D y Stock, S.R., 2001. Elements of X-Ray Diffraction. Tercera edición. Prentice Hall.
- Downs R T, and Hall-Wallace M 2003 Am. Mineral. 88 247
- Drees, L.R. y Ulery, A.L., 2008. Methods for Soil Analysis, part 5-Mineralogical methods.SSSA book series 5, Madison, Wisconsin, USA.
- Evans, M.E., Heller, F., 2003. Environmental Magnetism – Principles and Applications of Enviromagnetics. Elsevier (USA).
- Fischer, R.B., Peters, D.G., 1971. Compendio de análisis químico cuantitativo. Nueva editorial interamericana, S.A de C.V, primera edición.
- Foscolos, A.E., Powel T.G., Gunther, P.R., 1976. The use of clay minerals and inorganic and organic geochemical indicators for evaluating the degree of diagenesis and oil generating potential of shales. Geochim. Cosmochim. Acta, 40, 953-960.
- Greenwod, N.N., Gibb, T.C.,1971. Mössbauer Spectroscopy. Chapman and Hall Ltd, London.
- Hillel D., 1998. Environmental Soil Physics.Academic Press, San Diego.
- Kraus, W., Nolze, G., 1999 Federal Institute for Mater PowderCell for Windows Version.
- L'Annunziata, M., 2003. Handbook of Radioactivity Analysis, Academic Press.
- Lagarec, K., Rancourt, D. G., 1998. Mössbauer spectral analysis software for Windows, Version 1.0 University of Ottawa- Department of Physics.
- Montes, M. L., Taylor, M. A., Runco, J., Errico, L., Martinez, J., Desimoni, J., 2008. Implementación de la técnica de espectroscopía gamma para la determinación de humedad en suelos. ANALES AFA, Vol. 20.
- Murad, E., 2010. Mössbauer spectroscopy of clays, soils and their mineral constituents. Clay Minerals, 45, 413-430.
- Perillo Isaac, M.C., Hurley, D., McDonald, R.J., Norman, E.B., Smith, A.R., 1997. A natural calibration source for determining germanium detector efficiencies. Nucl. Inst.Meth. Phys. Res.A. 397, 310-316.
- Ritcher, M., Mizuno, I., Aranguez, S., Uriarte, S., 1975. Densimetric fractionation of soil organo-mineral complexes. Journal of Soil Science, 26, 2, 112-123.
- Skoog, D.A., West, D.M., 1974. Introducción a la química analítica. Editorial Reverte,
- United Nations Economic Commission for Europe Convention on long-range Transboundary Air Pollution., 2006. Soil Anal. Meth. 6 (SA06). Manual on methods and criteria for harmonized sampling, assessment, monitoring and analysis of the effects of air pollution on forests.
- Vandenberghe, R.E., 1991. Mössbauer spectroscopy and applications in geology. International Training Centre for Post-Graduate Soil Scientistis, second edition, Belgium.

Capítulo 4: Resultados

Se presentan aquí los resultados obtenidos de los distintos estudios realizados a las muestras de suelo y arcillas, abordando primero los temas de dosis y caracterización radiológica de los suelos y luego los relacionados con las características físico-químicas de los mismos.

4.1 Medidas de dosis *in situ*

La Tabla 4.1 muestra los valores mínimos, máximos y el promedio de dosis equivalente efectiva, en $\mu\text{Sv/h}$, obtenidos de la medición *in situ* utilizando un detector Geiger Müller. La dosis media más baja se observó en la zona de El Peligro y la más alta en la del Parque Pereyra Iraola, aunque el mayor valor máximo se obtuvo para la región de Villa Argüello. Si se observan los valores máximos obtenidos, se puede ver que los suelos pertenecientes a la zona de influencia estuárico marina son los que presentan los mayores valores.

Tabla 4.1: Mínimo, máximo y media de la dosis equivalente efectiva medida (DEE_M).

Zona de influencia	Lugar	DEE_M ($\mu\text{Sv/h}$)		
		Medio	Mínimo	Máximo
continental	El Peligro	0,125	0,089	0,209
	Arroyo Correa	0,143	0,095	0,203
	Los Hornos	0,131	0,065	0,203
estuárico marina	Villa Argüello	0,140	0,071	0,257
	Parque Pereyra	0,144	0,083	0,215
	Radio Provincia	0,137	0,059	0,233

En el Capítulo 5 se presenta un análisis más exhaustivo de los datos, comparando además esta variable con la contribución por el decaimiento de los radionucleidos presentes en suelos.

4.2 Caracterización radiológica de los suelos

Las Figura 4.1 muestra los espectros γ obtenidos para la región de El Peligro. Los correspondientes a los cinco suelos restantes son presentados en el Anexo I - A. La Tabla 4.2 presenta las actividades determinadas para el ^{40}K , el ^{226}Ra y la cadena del ^{232}Th , radionucleidos naturales, y del ^{137}Cs , único radionucleido antropogénico detectado. En la Figura 4.2 se presenta en forma ampliada la zona del espectro donde se encuentra el fotopico del ^{137}Cs .

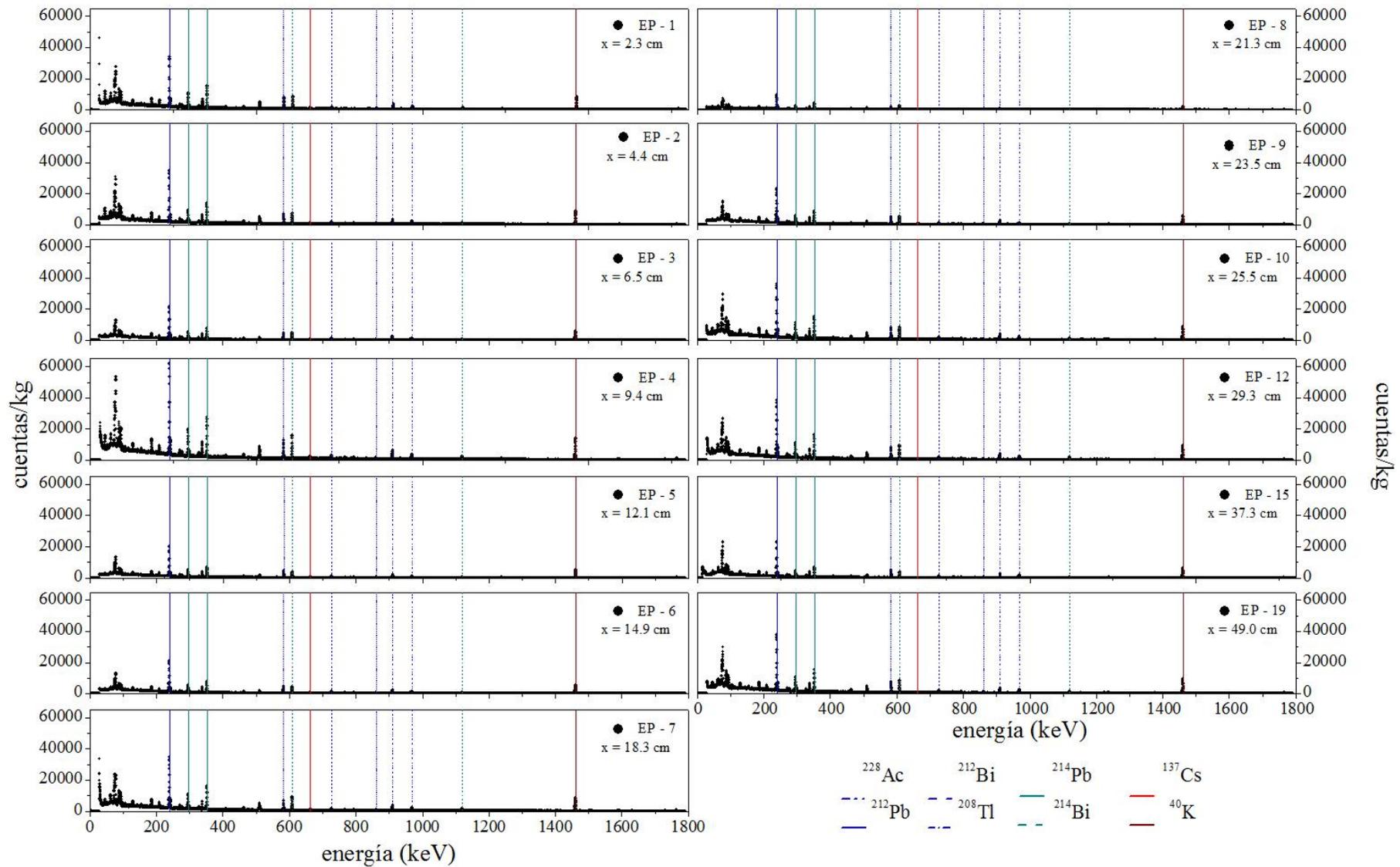


Figura 4.1: Espectros γ obtenidos para muestras de la zona de El Peligro. Las líneas azules representan fotopicos generados por el decaimiento de radionucleidos pertenecientes a la cadena del ^{232}Th , mientras que las verdes a los hijos del ^{226}Ra . La línea marrón y la roja representan las posiciones de los fotopicos asociados al ^{40}K y ^{137}Cs , respectivamente.

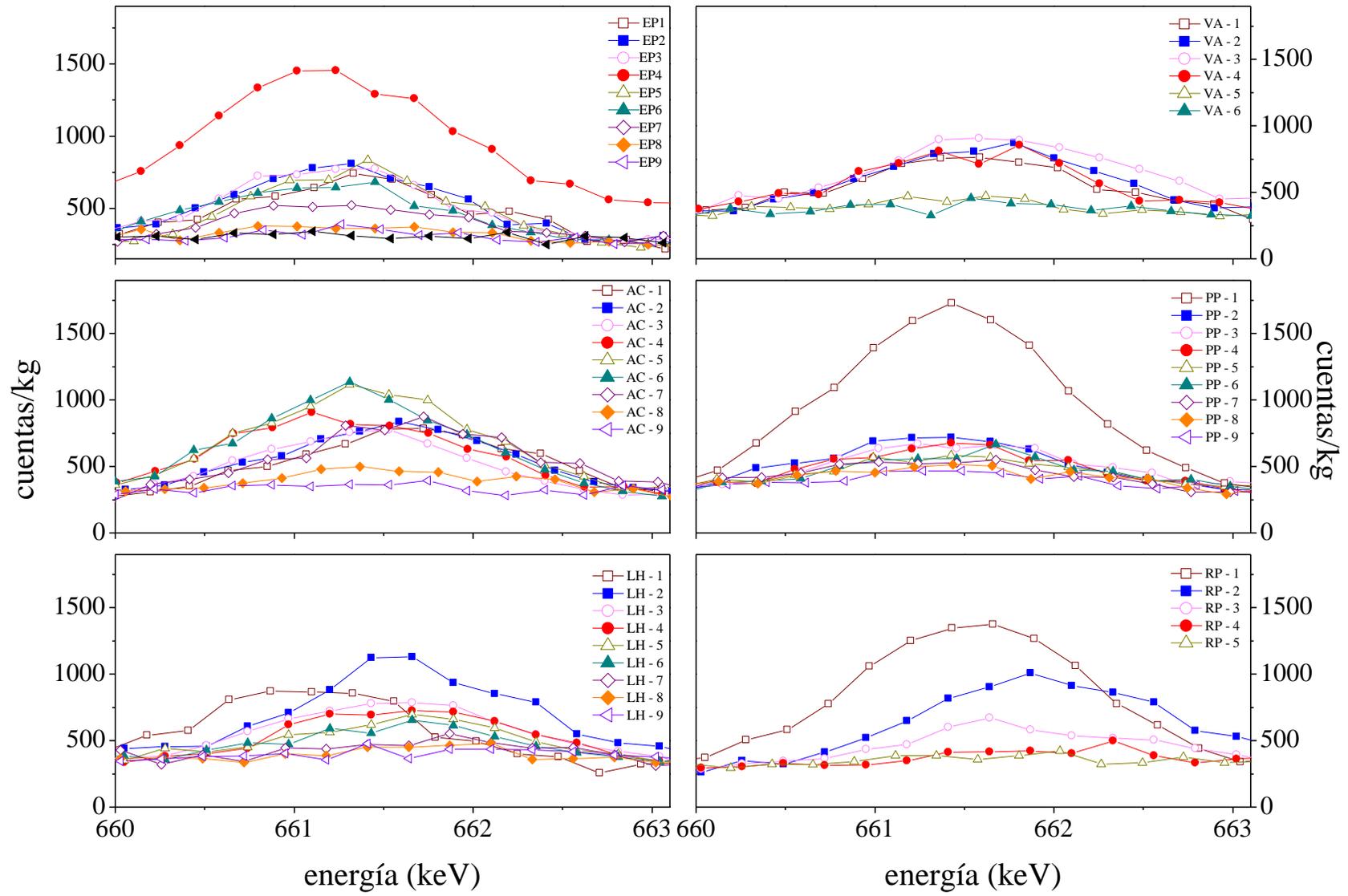


Figura 4.2: Fotopicos generado por el decaimiento del ^{137}Cs para las distintas zonas de muestreo a diferentes profundidades.

Tabla 4.2: Actividad del ^{40}K , del ^{226}Ra , del ^{232}Th y del ^{137}Cs , en Bq/kg para los suelos estudiados. L_D designa al límite de detección para el ^{137}Cs (0,2 Bq/kg).

Suelo	Muestra	x (cm)	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{137}Cs	Suelo	Muestra	X (cm)	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{137}Cs
EP	EP - 1	2,3	30±4	33±6	531±56	1,4 ± 0,2	VA	VA - 1	4,0	41±7	41±6	720±74	1,4 ± 0,2
	EP - 2	4,4	32±5	35±6	532±52	1,5 ± 0,2		VA - 2	7,8	38±5	42±5	740±76	1,6 ± 0,2
	EP - 3	6,5	33±4	34±5	565±60	1,6 ± 0,2		VA - 3	10,5	40±8	48±7	817±84	1,8 ± 0,3
	EP - 4	9,4	35±5	35±6	568±61	1,8 ± 0,2		VA - 4	14,3	37±7	45±6	755±78	1,4 ± 0,3
	EP - 5	12,1	31±4	32±6	571±54	1,7 ± 0,2		VA - 5	17,8	33±6	44±6	767±79	0,6 ± 0,2
	EP - 6	14,9	37±5	36±5	577±61	1,3 ± 0,2		VA - 6	20,0	28±6	47±6	783±81	0,3± 0,2
	EP - 7	18,3	33±4	35±6	576±61	0,8 ± 0,2		VA - 7	22,8	27±4	48±7	768±79	< L_D
	EP - 8	21,3	37±5	39±7	598±62	0,3 ± 0,2		VA - 8	26,8	33±6	50±7	758±78	< L_D
	EP - 9	23,5	38±6	39±6	618±66	0,2 ± 0,2		VA - 9	29,8	29±6	44±6	708±66	< L_D
	EP - 10	25,5	32±4	40±7	684±64	< L_D		VA - 13	39,3	23±5	48±8	636±51	< L_D
	EP - 12	29,3	35±4	45±13	733±73	< L_D		VA - 16	48,5	26±4	44±6	577±73	< L_D
	EP - 15	37,3	33±3	41±6	593±59	< L_D							
	EP - 19	49,0	32±5	42±7	726±69	< L_D							
AC	AC - 1	1,8	27±6	35±6	622±66	1,7 ± 0,3	PP	PP - 1	3,0	69±6	41±5	873±76	4,3 ± 0,3
	AC - 2	4,5	29±6	36±6	631±67	1,7 ± 0,3		PP - 2	6,5	60±4	43±5	717±80	1,3 ± 0,2
	AC - 3	7,3	25±5	35±5	615±64	1,5 ± 0,2		PP - 3	9,5	57±3	43±6	776±82	1,1 ± 0,2
	AC - 4	9,5	30±4	38±7	675±70	1,9 ± 0,2		PP - 4	12,5	48±4	44±6	797±83	1,1 ± 0,2
	AC - 5	12,0	30±6	37±5	688±71	2,4 ± 0,2		PP - 5	15,8	53±4	44±6	807±78	0,8 ± 0,2
	AC - 6	15,0	29±7	35±4	649±69	2,3 ± 0,2		PP - 6	18,5	47±5	43±5	743±91	0,7± 0,2
	AC - 7	18,8	30±6	35±5	653±67	1,8 ± 0,2		PP - 7	20,8	48±4	43±6	879±88	0,5± 0,2
	AC - 8	21,8	31±4	40±6	695±72	0,6 ± 0,2		PP - 8	23,3	52±6	42±5	856±88	0,5 ± 0,2
	AC - 9	25,0	32±6	39±7	723±74	0,3 ± 0,2		PP - 10	28,3	55±6	43±7	857±83	0,2± 0,2
	AC - 14	41,5	30±8	42±7	788±81	< L_D		PP - 12	33,5	56±6	41±6	804±85	< L_D
						PP - 16	44,8	38±4	39±5	828±83	< L_D		
LH	LH - 1	3,5	26±5	36±6	476±40	1,5 ± 0,3	RP	RP - 1	3,5	27±4	31±3	644±67	3,2±0,3
	LH - 2	7,0	27±5	38±5	574±51	1,6 ± 0,3		RP - 2	7,5	23±3	30±3	671±69	1,9±0,3
	LH - 3	11,5	28±4	40±5	578±51	1,4± 0,2		RP - 3	11,0	24±3	33±4	691±71	0,9±0,3
	LH - 4	15,5	27±4	40±5	611±63	1,2± 0,3		RP - 4	14,0	25±3	34±4	681±70	0,3±0,2
	LH - 5	17,5	28±5	42±6	607±63	1,0± 0,3		RP - 5	17,5	25±3	34±4	693±71	0,3±0,2
	LH - 6	19,3	28±5	41±6	609±63	0,8± 0,2		RP - 6	19,5	25±3	36±4	729±75	< L_D
	LH - 7	21,5	28±4	42±5	608±64	0,5± 0,2		RP - 7	22,0	27±4	38±4	749±53	< L_D
	LH - 8	24,3	27±4	41±5	618±64	0,3± 0,2		RP - 8	25,5	23±3	39±4	739±76	< L_D
	LH - 9	27,3	29±4	42±5	618±64	0,4± 0,2		RP - 9	30,0	24±3	41±5	738±75	< L_D
	LH - 10	29,5	28±4	40±5	634±65	< L_D		RP - 10	33,0	25±3	41±7	764±78	< L_D
	LH - 12	36,3	29±4	46±7	706±73	< L_D		RP - 13	40,3	23±3	43±6	787±80	< L_D
	LH - 16	48,8	23±5	43±6	716±73	< L_D		RP - 15	47,8	23±3	46±6	807±83	< L_D

Como se observa de la Tabla 4.2, el radionucleido con mayor actividad en los suelos estudiados es el ^{40}K . Si bien el ^{226}Ra y la cadena del ^{232}Th presentan actividades del mismo orden, en general la actividad de la cadena del ^{232}Th es mayor que la actividad del ^{226}Ra . La actividad del ^{226}Ra presenta variaciones en profundidad y espacio, observándose valores más elevados en los suelos de la zona de influencia estuárico marina, al igual que la actividad del ^{40}K . Por su parte, la actividad de la cadena del ^{232}Th es la que menos variabilidad presenta, siendo prácticamente constante en profundidad y espacio. La pregunta que surge es si las diferencias encontradas entre los perfiles de actividad de los radionucleidos naturales en estos suelos están relacionadas con variaciones en alguna/s de las propiedades de los suelos. En el Capítulo 5, se analiza la relación entre las actividades de los radionucleidos naturales con diferentes propiedades del medio.

El ^{137}Cs fue el único radionucleido antropogénico emisor gamma detectado. Como puede verse de la Tabla 4.2 y Figura 4.3, la actividad del mismo varía en profundidad y los perfiles obtenidos en los distintos suelos difieren además en la forma. Esto podría ser un indicativo de que la migración del radionucleido está afectada diferentemente por los distintos procesos que puede experimentar en el suelo. El análisis de los perfiles, su modelado y las relaciones entre las variaciones y las propiedades del suelo se abordan en el Capítulo 5.

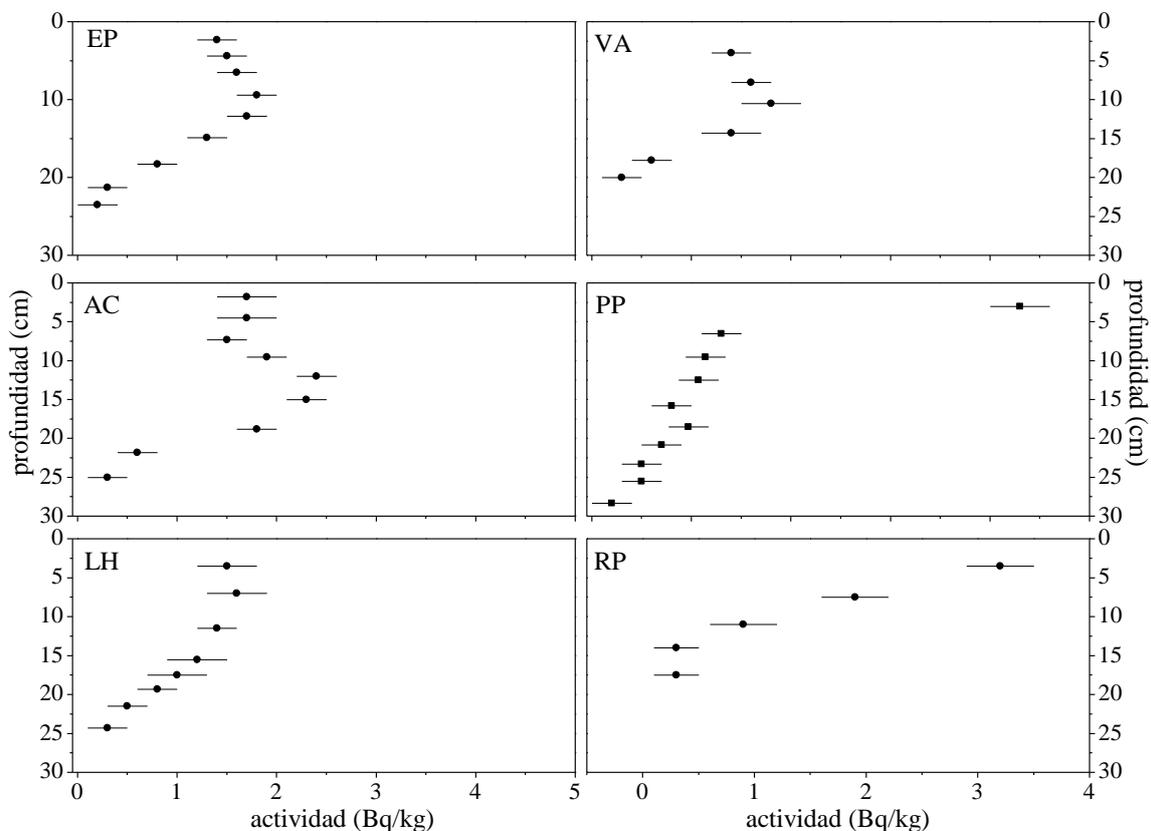


Figura 4.3: Perfiles de actividad de ^{137}Cs .

La Figura 4.4 resume los espectros obtenidos para las muestras colectadas en superficie para la zona de La Plata y la Figura 4.5 para la zona de Ezeiza. La Tabla 4.3 presenta las actividades determinadas para dichos suelos.

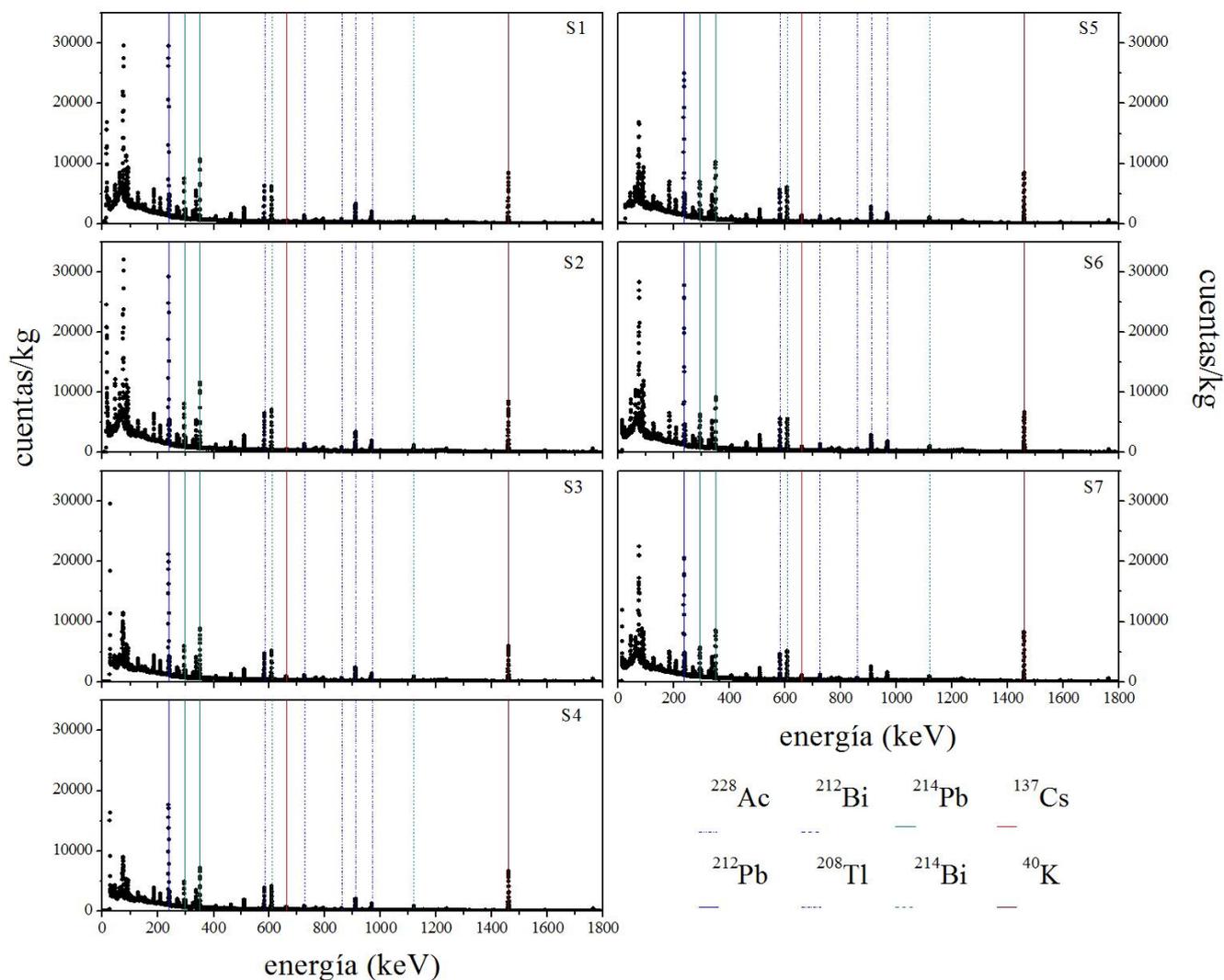


Figura 4.4: Espectros γ obtenidos para muestras superficiales de la zona de La Plata. Las líneas azules representan fotopicos generados por el decaimiento de radionucleidos pertenecientes a la cadena del ^{232}Th , mientras que las verdes a los hijos del ^{226}Ra . La línea marrón y la roja representan las posiciones de los fotopicos asociados al ^{40}K y ^{137}Cs , respectivamente.

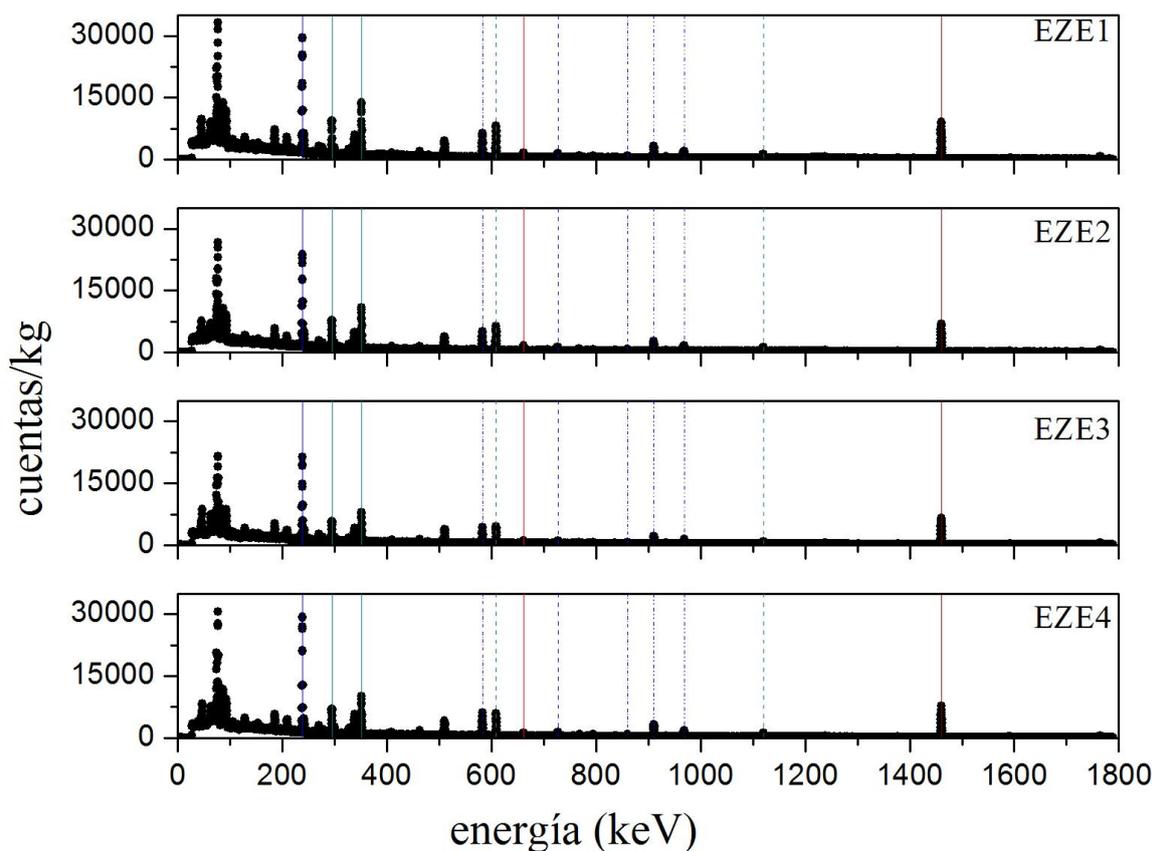


Figura 4.5: Espectros γ obtenidos para suelos superficiales de la región de Ezeiza. Las líneas utilizadas representan lo mismo que en los espectros anteriores.

Tabla 4.3: Actividad en muestras superficiales. El Límite de detección para la actividad del ^{137}Cs es de 0,2 Bq/kg.

Suelo	Zona de influencia	^{226}Ra (Bq/kg)	^{232}Th (Bq/kg)	^{40}K (Bq/kg)	^{137}Cs (Bq/kg)
Región La Plata					
S1	continental	27±5	40±6	647±66	<L _D
S2	continental	26±3	37±5	607±70	<L _D
S3	continental	28±7	35±5	576±61	2,0±0,2
S4	continental	21±3	30±5	658±70	1,6±0,2
S5	estuárico marina	61±8	43±6	873±90	3,1±0,3
S6	estuárico marina	27±4	37±4	615±64	1,3±0,3
S7	estuárico marina	26±4	31±4	653±65	2,2±0,3
Región de Ezeiza					
EZE1	-	26±5	35±19	644±92	2,5±0,5
EZE2	-	21±3	27±18	498±87	2,6±0,5
EZE3	-	20±3	24±15	470±78	1,5±0,4
EZE4	-	18±3	32±8	547±81	2,0±0,4

4.3 Caracterización del suelo – muestras crudas

Dado que los perfiles de actividad determinados para los suelos de la región de La Plata mostraron diferencias entre sí, podría esperarse que los suelos estudiados presenten diferencias entre alguna/s de sus propiedades. Así, es de suma importancia realizar un estudio complementario al

radiológico, que permita relacionar las variaciones en la distribución de las actividades con las propiedades del suelo. Se presentan a continuación los resultados de las variables de interés para este trabajo.

4.3.1 Porcentaje de carbono orgánico y pH

La Tabla 4.4 y la Figura 4.6 muestran los porcentajes de carbono orgánico como función de la profundidad para cada uno de los suelos. Como puede verse, este parámetro presenta el mismo comportamiento en los seis suelos estudiados, observándose una disminución con la profundidad. Además, todos los suelos presentan magnitudes similares, con excepción del perfil determinado en la región de Los Hornos, donde en superficie el % de C_{org} es levemente mayor (aproximadamente 6% para LH, cerca del 4% para el resto de los suelos).

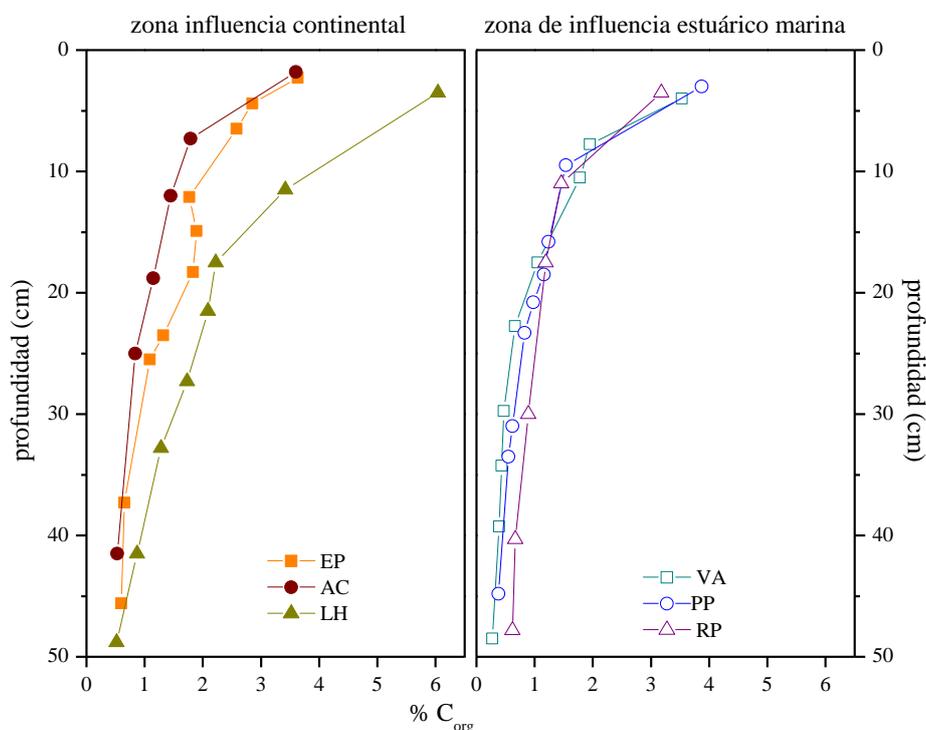


Figura 4.6: Perfiles de carbono orgánico, zona de influencia continental, izquierda y zona de influencia estuárico marina, derecha.

Los resultados de pH para cada uno de los suelos son mostrados en la Tabla 4.5 Además se incluye el valor promedio de pH calculado considerando la profundidad hasta donde se detectó ^{137}Cs (ver Tabla 4.2). Los resultados son representados gráficamente en la Figura 4.7. En general, los suelos pertenecientes a la zona de influencia continental presentan menor pH que los pertenecientes a la zona de influencia estuárico marina, excepto el suelo de la región de Arroyo Correa, donde en las capas más profundas los valores determinados de pH se acercan a los determinados en la zona

cercana a la costa. Los suelos de El Peligro, Los Hornos y Villa Argüello no presentan variaciones significativas en profundidad, presentando valores medios de 6,5, 6,3 y 8,6, respectivamente. Por su parte, los tres suelos restantes presentan un aumento del pH con la profundidad, alcanzando un valor cercano a 9 a los 50 cm. Este parámetro depende, entre otros factores, de las concentraciones de sodio y carbonatos en el suelo, por lo tanto las variaciones en los perfiles podrían estar relacionadas con variaciones de concentración de dichos elementos en el suelo.

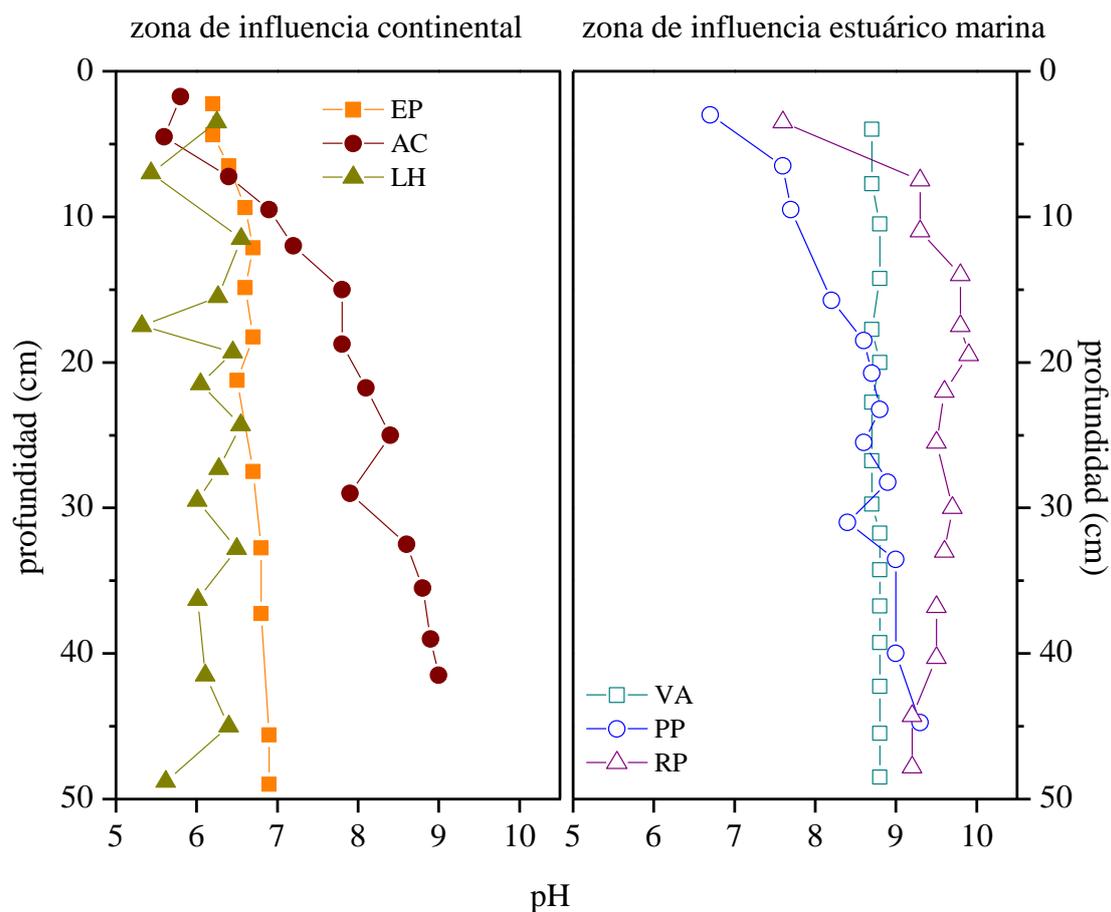


Figura 4.7: Perfiles de pH, zona de influencia continental, izquierda, y zona de influencia estuárico marina, derecha.

Tabla 4.4: % de carbono orgánico (C_{org}) según el suelo y la profundidad.

Código	x (cm)	C _{org} (%)	Código	x (cm)	C _{org} (%)	Código	x (cm)	C _{org} (%)	Código	x (cm)	C _{org} (%)	Código	x (cm)	C _{org} (%)	Código	x (cm)	C _{org} (%)
El Peligro			Arroyo Correa			Los Hornos			Villa Argüello			Parque Pereyra			Radio Provincia		
EP - 1	2,3	3,63	AC - 1	1,8	3,60	LH - 1	3,5	6,04	VA - 1	4,0	3,53	PP - 1	3,0	3,87	RP - 1	3,5	3,18
EP - 2	4,4	2,85	AC - 3	7,3	1,79	LH - 3	11,5	3,42	VA - 2	7,8	1,95	PP - 3	9,5	1,54	RP - 3	11,0	1,46
EP - 3	6,5	2,58	AC - 5	12,0	1,45	LH - 5	17,5	2,22	VA - 3	10,5	1,78	PP - 5	15,8	1,24	RP - 5	17,5	1,19
EP - 5	12,1	1,77	AC - 7	18,8	1,15	LH - 7	21,5	2,09	VA - 5	17,8	1,05	PP - 6	18,5	1,16	RP - 9	30,0	0,89
EP - 6	14,9	1,89	AC - 9	25,0	0,84	LH - 9	27,3	1,73	VA - 7	22,8	0,66	PP - 7	20,8	0,98	RP - 13	40,3	0,67
EP - 7	18,3	1,83	AC - 14	41,5	0,53	LH - 11	32,8	1,28	VA - 9	29,8	0,47	PP - 8	23,3	0,83	RP - 15	47,8	0,62
EP - 9	23,5	1,32				LH - 14	41,5	0,87	VA - 11	34,3	0,43	PP - 11	31,0	0,62			
EP - 10	25,5	1,09				LH - 16	48,8	0,52	VA - 13	39,3	0,39	PP - 12	33,5	0,55			
EP - 15	37,3	0,65							VA - 16	48,5	0,27	PP - 16	44,8	0,38			
EP - 18	45,6	0,60															

Tabla 4.5: pH como función de la profundidad (x). Se indica el valor medio de pH en la columna hasta la profundidad que fue detectado Cs.

código	x (cm)	pH	código	x (cm)	pH	código	x (cm)	pH	código	x (cm)	pH	código	x (cm)	pH	código	x (cm)	pH
El Peligro			Arroyo Correa			Los Hornos			Villa Argüello			Parque Pereyra			Radio Provincia		
EP - 1	2,3	6,2	AC - 1	1,8	5,8	LH - 1	3,5	6,3	VA - 1	4,0	8,7	PP - 1	3,0	6,7	RP - 1	3,5	7,6
EP - 2	4,4	6,2	AC - 2	4,5	5,6	LH - 2	7,0	5,4	VA - 2	7,8	8,7	PP - 2	6,5	7,6	RP - 2	7,5	9,3
EP - 3	6,5	6,4	AC - 3	7,3	6,4	LH - 3	11,5	6,6	VA - 3	10,5	8,8	PP - 3	9,5	7,7	RP - 3	11,0	9,3
EP - 4	9,4	6,6	AC - 4	9,5	6,9	LH - 4	15,5	6,3	VA - 4	14,3	8,8	PP - 5	15,8	8,2	RP - 4	14,0	9,8
EP - 5	12,1	6,7	AC - 5	12,0	7,2	LH - 5	17,5	5,3	VA - 5	17,8	8,7	PP - 6	18,5	8,6	RP - 5	17,5	9,8
EP - 6	14,9	6,6	AC - 6	15,0	7,8	LH - 6	19,3	6,5	VA - 6	20,0	8,8	PP - 7	20,8	8,7	RP - 6	19,5	9,9
EP - 7	18,3	6,7	AC - 7	18,8	7,8	LH - 7	21,5	6,1	VA - 7	22,8	8,7	PP - 8	23,3	8,8	RP - 7	22,0	9,6
EP - 8	21,3	6,5	AC - 8	21,8	8,1	LH - 8	24,3	6,5	VA - 8	26,8	8,7	PP - 9	25,5	8,6	RP - 8	25,5	9,5
EP - 11	27,5	6,7	AC - 9	25,0	8,4	LH - 9	27,3	6,3	VA - 9	29,8	8,7	PP - 10	28,3	8,9	RP - 9	30,0	9,7
EP - 13	32,8	6,8	AC - 10	29,0	7,9	LH - 10	29,5	6,0	VA - 10	31,8	8,8	PP - 11	31,0	8,4	RP - 10	33,0	9,6
EP - 15	37,3	6,8	AC - 11	32,5	8,6	LH - 11	32,8	6,5	VA - 11	34,3	8,8	PP - 12	33,5	9	RP - 11	34,8	--
EP - 18	45,6	6,9	AC - 12	35,5	8,8	LH - 12	36,3	6,0	VA - 12	36,8	8,8	PP - 14	40,0	9	RP - 12	36,8	9,5
EP - 19	49,0	6,9	AC - 13	39,0	8,9	LH - 14	41,5	6,1	VA - 13	39,3	8,8	PP - 16	44,8	9,3	RP - 13	40,3	9,5
			AC - 14	41,5	9	LH - 15	45,0	6,4	VA - 14	42,3	8,8				RP - 14	44,3	9,2
						LH - 16	48,8	5,6	VA - 15	45,5	8,8				RP - 15	47,8	9,2
									VA - 16	48,5	8,8						
valor medio hasta donde se detectó ¹³⁷ Cs																	
6,5			7,1			6,1			8,8			8,2			9,2		

4.3.2 Caracterización magnética: VSM

Si bien son varias las medidas y parámetros que se pueden obtener mediante la utilización del susceptómetro de muestra vibrante, aquí se prestará especial atención a aquellos parámetros de interés para este trabajo (M_s y χ_{hifi}). Dado que la mayoría minerales con los que interactúan los radionucleidos presentan comportamiento paramagnético (ver Capítulo 1), una de las variables magnéticas de mayor interés es la susceptibilidad de alto campo, directamente relacionada con el contenido de material paramagnético y diamagnético de las muestras (Tauxe, 2005). Otra de las variables de interés es la magnetización de saturación, relacionada con la concentración de material magnético presente en las muestras. Por completitud, la Tabla 4.6 resume todos los parámetros obtenidos de los ciclos de histéresis.

Tabla 4.6: Parámetros magnéticos obtenidos del ciclo de histéresis para los suelos estudiados.

Suelo	Código	x (cm)	χ_{hifi} (10^{-8} m ³ /kg)	M_s (10^{-3} Am ² /kg)	M_r (10^{-3} Am ² /kg)	Hc (mT)
El Peligro	EP - 1	2,3	3,46±0,04	58,4±0,2	7,4±0,9	-9±1
	EP - 7	18,3	4,15±0,05	65,3±0,2	9,0±1,0	-9±1
	EP - 9	23,5	4,20±0,04	49,7±0,2	6,4±0,9	-9±1
	EP - 12	29,3	7,64±0,04	43,6±0,2	5,8±0,8	-9±1
	EP - 19	49,0	8,39±0,04	55,1±0,2	6,2±0,4	-9±1
Arroyo Correa	AC - 1	1,8	3,69±0,04	58,6±0,2	9,7±0,9	-9±1
	AC - 5	12,0	4,22±0,05	60,7±0,2	9,7±0,9	-9±1
	AC - 8	21,8	5,23±0,05	74,1±0,2	11,0±1,0	-9±1
	AC - 12	35,5	8,80±0,10	130,7±0,3	19,0±2,0	-9±1
	AC - 14	41,5	8,20±0,10	133,0±0,3	20±2,0	-9±1
Los Hornos	LH - 1	3,5	4,07±0,04	50,0±0,2	7,0±1,0	11±2
	LH - 2	7,0	3,62±0,04	44,9±0,2	7,9±0,9	9±2
	LH - 5	17,5	4,62±0,05	40,2±0,2	7,5±0,8	11±2
	LH - 9	27,3	4,40±0,03	36,5±0,1	6,9±0,9	9±2
	LH - 13	38,8	9,15±0,03	44,9±0,1	7,6±0,9	9±2
Villa Argüello	LH - 16	48,8	4,11±0,04	61,3±0,2	9,0±1,0	9±2
	VA - 1	4,0	11,18±0,01	10,63±0,05	2,2±0,2	13±1
	VA - 3	10,5	12,78±0,01	6,11±0,04	1,5±0,1	13±1
	VA - 7	22,8	13,93±0,01	5,00±0,06	1,3±0,1	13±1
	VA - 11	34,3	14,20±0,01	4,36±0,05	1,2±0,1	13±1
Parque Pereyra	VA - 16	48,5	14,10±0,01	4,27±0,07	1,2±0,1	15±1
	PP - 1	3,0	10,81±0,01	17,89±0,07	2,3±0,3	11±2
	PP - 3	9,5	12,15±0,01	6,51±0,04	1,1±0,1	13±1
	PP - 5	15,8	12,13±0,01	2,60±0,04	0,7±0,1	21±1
	PP - 10	28,3	13,28±0,01	7,96±0,04	1,3±0,2	11±1
	PP - 14	40,0	9,79±0,01	4,19±0,03	0,9±0,1	17±1
Radio Provincia	PP - 16	44,8	12,28±0,01	10,8±0,05	1,8±0,2	13±1
	RP - 1	3,5	4,26±0,04	31,10±0,10	4,1±0,6	9±2
	RP - 5	17,5	3,61±0,03	18,00±0,10	3,8±0,3	14±2
	RP - 9	30,0	7,83±0,03	12,86±0,06	2,5±0,3	11±2
	RP - 11	34,8	8,66±0,03	11,93±0,06	2,3±0,3	11±2
RP - 15	47,8	9,98±0,03	13,22±0,06	2,2±0,3	11±2	

Los ciclos de histéresis medidos para la región de El Peligro así como una ampliación de la región central de los mismos son presentados en la Figura 4.8, mientras que los correspondientes a los restantes cinco suelos son presentados en el Anexo I-B.

Las dos variables de interés presentan diferencias cuando son comparadas entre los distintos suelos, indicando que podría haber variaciones en la concentración del material magnético.

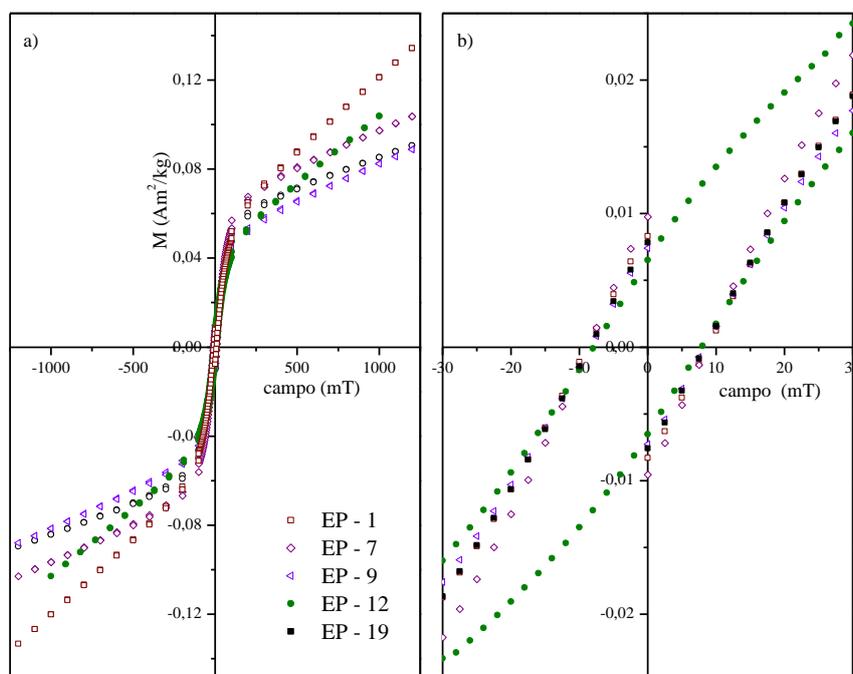


Figura 4.8: Zona de El Peligro, a) ciclo de histéresis, b) parte central del ciclo de histéresis.

4.3.3 Susceptibilidad AC y Análisis hiperfino (Espectroscopia Mössbauer)

La presencia de mezclas de minerales en el suelo dificulta la identificación de los mismos de manera directa usando Espectroscopía Mössbauer, ya que los parámetros hiperfinos que presentan son similares entre sí. Sin embargo, el estudio de las fases relativas de cada uno de los sitios determinados puede ser muy útil a la hora de estudiar variaciones a lo largo de la columna de suelo.

Todos los espectros Mössbauer fueron ajustados con: dos contribuciones de Fe^{3+} , una de Fe^{2+} (dobletes en la parte central) y con contribuciones magnéticas, además de una relajación paramagnética. A fin de complementar el análisis hiperfino y confirmar cuales son las fases magnéticas presentes en las muestras, se realizaron medidas de susceptibilidad magnética AC en función de la temperatura. Las medidas de susceptibilidad magnética AC resultaron similares para todos los suelos. A modo de ejemplo, se presentan las medidas realizadas en las muestras de El Peligro (Figura 4.9). Las curvas de las muestras más superficiales (EP-1 y EP-7) presentan distinto

comportamiento que las más profundas (EP-12 y EP-18). Para EP-1 y EP-7 se observa claramente la transición de Verwey, lo que indica la presencia de magnetita en dichas muestras. Además, el pequeño salto en la susceptibilidad observado para la temperatura de Morin indica la presencia de hematita.

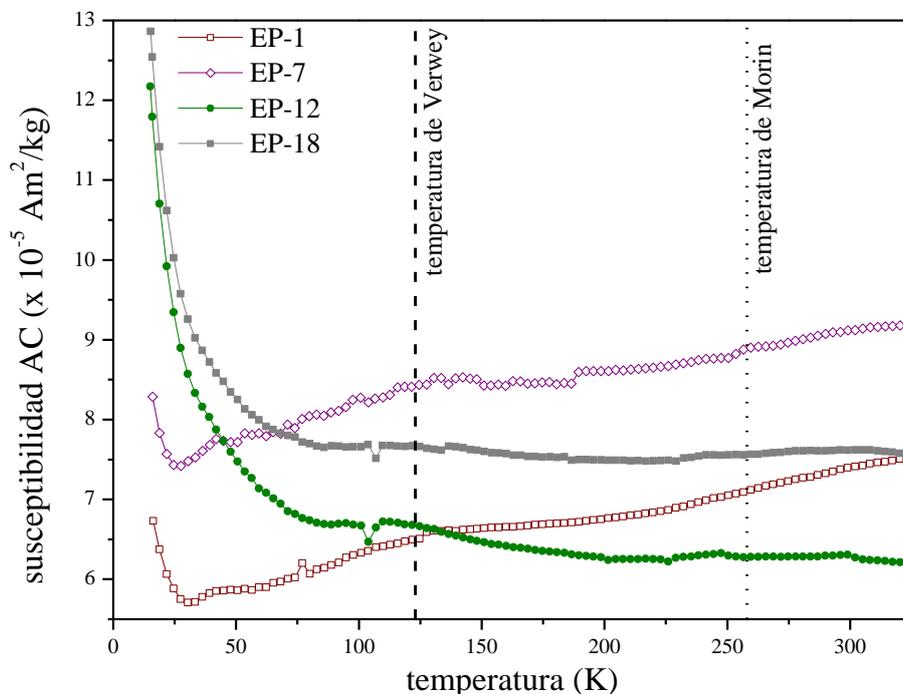


Figura 4.9: Susceptibilidad AC en función de la temperatura para muestras de El Peligro. En la figura están indicadas las temperaturas de Verwey y Morin.

Los espectros Mössbauer determinados a temperatura ambiente para la zona de El Peligro, son mostrados en la Figura 4.10, mientras que los correspondientes a los suelos de Arroyo Correa y Los hornos son presentados en el Anexo Ic. Las líneas representan el ajuste al espectro y las contribuciones de las distintas interacciones consideradas según el código de colores descrito en las mismas. Los parámetros hiperfinos obtenidos para el suelo de El Peligro según el modelo de ajuste son resumidos en la Tabla 4.7. Los parámetros hiperfinos obtenidos para Arroyo Correa y Los Hornos son presentados en el Anexo Ic. La asignación del estado de oxidación se realizó acorde a los valores determinados de corrimiento isomérico (Murad, 2010). Los números seguidos de asterisco (*) indican que el parámetro fue fijado durante el ajuste y los subíndices indican el ancho de línea Gaussiano utilizado para la distribución de cada parámetro. El ancho de línea Voiteano utilizado en todos los casos fue de 0,13.

Basados en los resultados de susceptibilidad magnética y de los parámetros tomados de los ciclos de histéresis, los sitios magnéticos utilizados para el ajuste de los espectros Mössbauer fueron hematita (en todos los casos) y magnetita, cuando fue necesario. Si bien el estudio de propiedades

magnéticas de todas las muestras indica la presencia de magnetita, esta fase fue utilizada para el ajuste de los espectros Mössbauer sólo en aquellos casos donde los picos generados por la presencia de hematita mostraban algún tipo de asimetría. En tales casos, se incluyeron los dos sitios esperados para la magnetita, con parámetros fijos.

La Figura 4.11, muestra los espectros Mössbauer, tomados a temperatura ambiente, para los suelos de la región de Villa Argüello. Los parámetros hiperfinos obtenidos de los ajustes son presentados en la Tabla 4.8. Los espectros y el resultado de los ajustes para los suelos de Parque Pereyra y Radio Provincia son presentados en el Anexo Ic. Las fases propuestas para el ajuste de estos espectros son las mismas que las utilizadas para los ajustes de las muestras pertenecientes a la zona de influencia continental, en base a las mismas consideraciones.

Los entornos de Fe^{3+} y Fe^{2+} pueden atribuirse a la presencia de minerales no magnéticos (ver parámetros hiperfinos de los minerales presentados en el Capítulo 1). La necesidad de utilizar un sitio de relajación paramagnética podría indicar la presencia de al menos un filosilicato con pobre contenido de Fe, como podría ser el caso de la caolinita (Murad, 1998).

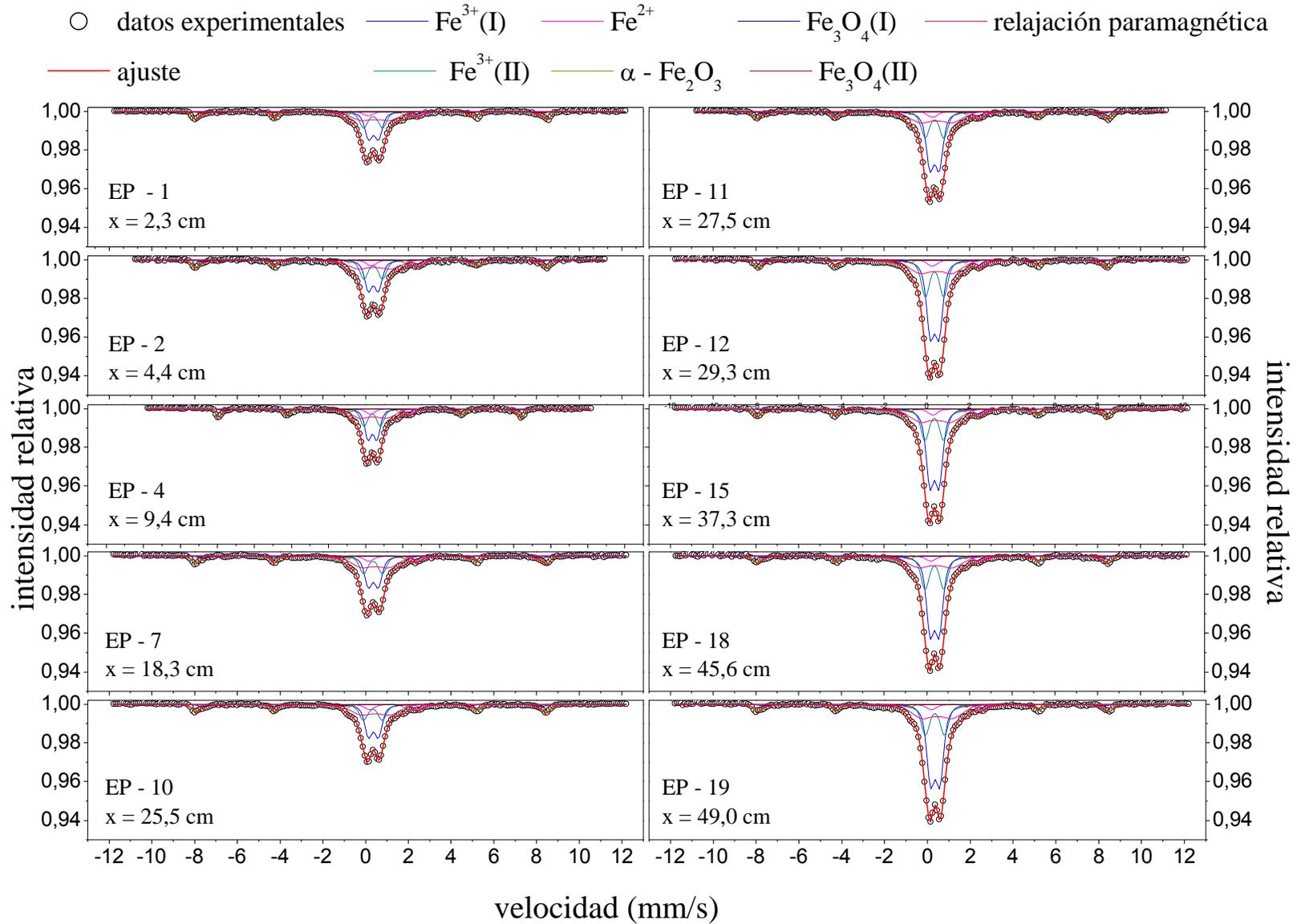


Figura 4.10: Espectros Mössbauer (RT) y ajuste propuesto para la zona de El Peligro.

Tabla 4.7: Parámetros hiperfinos a RT obtenidos del ajuste de los espectros Mössbauer para la zona de El Peligro. δ , Δ , ε y H representan el corrimiento isomérico, el desdoblamiento cuadrupolar, el corrimiento cuadrupolar y el campo magnético, mientras que FR, en porcentaje, es la fracción relativa de cada una de las fases.

Sitios paramagnéticos										
Código	x (cm)	Fe ³⁺ (I)			Fe ³⁺ (II)			Fe ²⁺		
		δ	Δ	FR (%)	δ	Δ	FR (%)	δ	Δ	FR (%)
EP - 1	2,3	0,36 _{0,10} *	0,46 _{0,10} *	29±2	0,34 _{0,10} *	0,88* _{0,15} *	19±3	1,27 _{0,15} *	2,31 _{0,15} *	6±1
EP - 2	4,4	0,36 _{0,10} *	0,47 _{0,10} *	29±7	0,34 _{0,10} *	0,87 _{0,15} *	20±6	1,37 _{0,15} *	2,22 _{0,15} *	7±2
EP - 4	9,4	0,36 _{0,10} *	0,47 _{0,10} *	30±2	0,35 _{0,10} *	0,88* _{0,15} *	19±3	1,31 _{0,15} *	2,14 _{0,15} *	7±1
EP - 7	18,3	0,35 _{0,10} *	0,46 _{0,10} *	29±2	0,34 _{0,10} *	0,88* _{0,15} *	18±3	1,28 _{0,15} *	2,27 _{0,15} *	6±1
EP - 10	25,5	0,36 _{0,10} *	0,46 _{0,10} *	31±2	0,34 _{0,10} *	0,88* _{0,15} *	17±3	1,32 _{0,15} *	2,27 _{0,15} *	6±1
EP - 11	27,5	0,36 _{0,10} *	0,43 _{0,10} *	40±3	0,36 _{0,10} *	0,87 _{0,15} *	20±3	1,36 _{0,15} *	2,20 _{0,15} *	5±1
EP - 12	29,3	0,36 _{0,10} *	0,41 _{0,10} *	42±3	0,35 _{0,10} *	0,86 _{0,15} *	23±2	1,37 _{0,15} *	2,25 _{0,15} *	5±1
EP - 15	37,3	0,35 _{0,10} *	0,42 _{0,10} *	43±3	0,34 _{0,10} *	0,88 _{0,15} *	20±2	1,37 _{0,15} *	2,21 _{0,15} *	5±1
EP - 18	45,6	0,36 _{0,10} *	0,42 _{0,10} *	45±2	0,35 _{0,10} *	0,88* _{0,15} *	22±2	1,30 _{0,15} *	2,25 _{0,15} *	4±1
EP - 19	48,9	0,36 _{0,10} *	0,42 _{0,10} *	45±2	0,34 _{0,10} *	0,88* _{0,15} *	20±2	1,34 _{0,15} *	2,31 _{0,15} *	4±1

Sitios magnéticos									
Código	x (cm)	$\alpha - \text{Fe}_2\text{O}_3$				Relajación paramagnética			
		δ (mm/s)	ε (mm/s)	H (T)	FR (%)	Fe ₂ O ₃ FR (%)	δ (mm/s)	H (T)	FR (%)
EP - 1	2,3	0,39±0,01	-0,11±0,01	51,1 _{0,5}	15±1	8±3	0,44 _{0,15} *	6 ₂ *	23±3
EP - 2	4,4	0,40±0,02	-0,12±0,02	51,1 _{0,5}	14±3	7±4	0,41 _{0,15} *	6 ₂ *	23±4
EP - 4	9,4	0,38±0,02	-0,12±0,02	50,8 _{0,4}	14±2	6±4	0,41 _{0,15} *	6 ₂ *	23±3
EP - 7	18,3	0,38±0,01	-0,12±0,02	51,0 _{0,6}	14±2	7±3	0,45 _{0,15} *	6 ₂ *	26±3
EP - 10	25,5	0,39±0,01	-0,12±0,01	51,0 _{0,6}	14±1	7±3	0,46 _{0,15} *	6 ₂ *	25±2
EP - 11	27,5	0,40±0,02	-0,12±0,02	51,0 _{0,6}	9±1	5±2	0,43 _{0,15} *	6 ₂ *	20±2
EP - 12	29,8	0,40±0,02	-0,12±0,02	50,8 _{0,6}	8±1	3±2	0,42 _{0,15} *	6 ₂ *	19±2
EP - 15	37,3	0,38±0,02	-0,10±0,02	51,0 _{0,6}	9±1	4±2	0,40 _{0,15} *	6 ₂ *	20±2
EP - 18	45,6	0,40±0,03	-0,12±0,03	50,9 _{0,7}	8±1	3±3	0,39 _{0,15} *	6 ₂ *	18±2
EP - 19	48,9	0,39±0,02	-0,11±0,02	50,8 _{0,7}	9±1	3±2	0,45 _{0,15} *	6 ₂ *	20±2

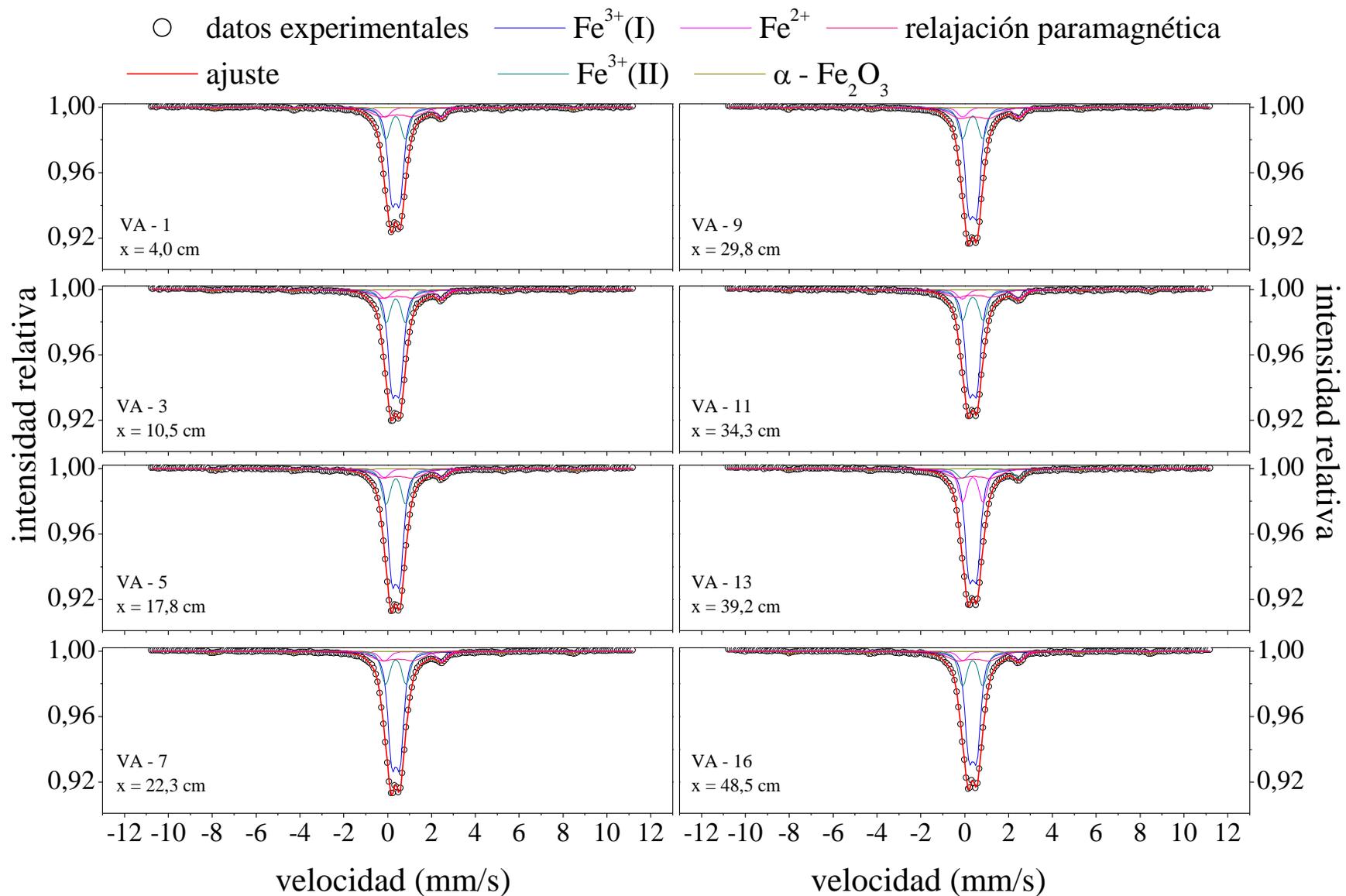


Figura 4.11: Espectros Mössbauer con sus correspondientes ajustes obtenidos para la zona de Villa Argüello.

Tabla 4.8: Parámetros hiperfinos obtenido del ajuste de los espectros Mössbauer de la zona de Villa Argüello. δ , Δ , ε y H representan el corrimiento isomérico, el desdoblamiento cuadrupolar, el corrimiento cuadrupolar y el campo magnético, mientras que FR, en porcentaje, es la fracción relativa de cada una de las fases.

Sitios paramagnéticos										
Código	x (cm)	Fe ³⁺			Fe ²⁺			Fe ³⁺		
		δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)	δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)	δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)
VA - 1	4,0	0,36 _{0,10} *	0,38 _{0,10} *	54±2	1,16 _{0,15} *	2,56 _{0,15} *	8±1	0,36 _{0,10} *	0,90 _{0,15} *	21±2
VA - 3	10,5	0,36 _{0,10} *	0,36 _{0,10} *	56±1	1,16 _{0,15} *	2,58 _{0,15} *	7±1	0,36 _{0,10} *	0,90 _{0,15} *	22±1
VA - 5	17,8	0,36 _{0,10} *	0,37 _{0,10} *	57±1	1,16 _{0,15} *	2,64 _{0,15} *	6±1	0,36 _{0,10} *	0,90 _{0,15} *	22±1
VA - 7	22,8	0,36 _{0,10} *	0,37 _{0,10} *	58±1	1,15 _{0,15} *	2,62 _{0,15} *	7±1	0,36 _{0,10} *	0,94 _{0,15} *	20±1
VA - 9	29,8	0,36 _{0,10} *	0,37 _{0,10} *	56±2	1,18 _{0,15} *	2,55 _{0,15} *	7±1	0,35 _{0,10} *	0,92 _{0,15} *	20±1
VA - 11	34,3	0,36 _{0,10} *	0,37 _{0,10} *	57±2	1,17 _{0,15} *	2,59 _{0,15} *	7±1	0,36 _{0,10} *	0,95 _{0,15} *	21±1
VA - 13	39,3	0,36 _{0,10} *	0,37 _{0,10} *	56±2	1,18 _{0,15} *	2,59 _{0,15} *	7±1	0,36 _{0,10} *	0,94 _{0,15} *	21±1
VA - 16	48,5	0,36 _{0,10} *	0,37 _{0,10} *	56±2	1,19 _{0,15} *	2,56 _{0,15} *	7±1	0,36 _{0,10} *	0,93 _{0,15} *	22±1

Sitios magnéticos									
Código	x (cm)	$\alpha - \text{Fe}_2\text{O}_3$				Relajación paramagnética			
		δ (mm/s)	ε (mm/s)	H (T)	FR (%)	δ (mm/s)	H (T)	FR (%)	
VA - 1	4,0	0,40±0,04	-0,09±0,04	50,6 _{0,7}	3±1	0,42 _{0,10} *	6 ₂ *	14±2	
VA - 3	10,5	0,36±0,05	-0,14±0,05	50,7 _{0,5}	2±1	0,43 _{0,10} *	6 ₂ *	13±2	
VA - 5	17,8	0,44±0,05	-0,09±0,05	50,9 _{0,7}	2±1	0,45 _{0,10} *	6 ₂ *	13±1	
VA - 7	22,8	0,36±0,04	-0,10±0,04	50,8 _{0,5}	2±1	0,43 _{0,10} *	6 ₂ *	13±1	
VA - 9	29,8	0,37±0,04	-0,15±0,04	51,1 _{0,2}	2±1	0,44 _{0,10} *	6 ₂ *	15±2	
VA - 11	34,3	0,37±0,05	-0,13±0,05	51,1 _{0,3}	2±1	0,42 _{0,10} *	7 ₂ *	12±2	
VA - 13	39,3	0,37±0,05	-0,12±0,05	50,9 _{0,4}	2±1	0,41 _{0,10} *	6 ₂ *	14±2	
VA - 16	48,5	0,35±0,03	-0,10±0,03	50,9 _{0,4}	3±1	0,40 _{0,10} *	6 ₂ *	13±2	

4.3.4 Difracción de Rayos X

Los minerales presentes en las muestras de suelo pueden tener espaciados muy similares entre sí, y su identificación mediante Difracción de Rayos X no es sencilla. En este trabajo se realizaron este tipo de medidas en muestras crudas selectas, pero su posterior análisis no arrojó resultados satisfactorios. A modo de ejemplo, la Figura 4.12 presenta los difractogramas obtenidos de la medición de los suelos crudos de las muestras en polvo EP-1 y EP-19 entre 10° y 65°. Las líneas de la figura indican las posiciones de las reflexiones en el difractograma teórico de algunos de los minerales esperados en suelos.

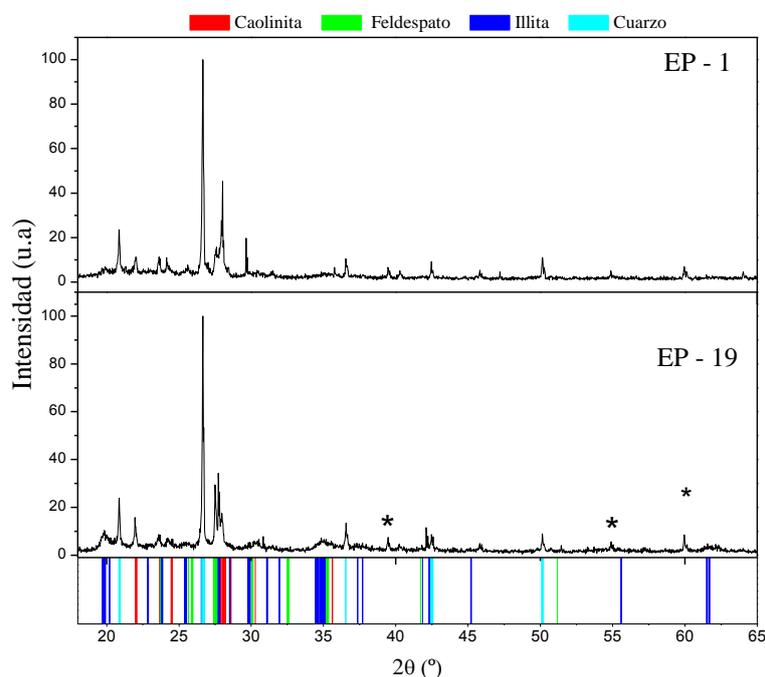


Figura 4.12: Difractogramas obtenidos de la medición de las muestras crudas EP-1 y EP-19. Las líneas de color representan las posiciones de las reflexiones esperadas para algunos de los posibles minerales componentes del suelo. El asterisco denota picos sin identificar.

4.3.5 Análisis textural

El porcentaje presente de cada una de las fracciones de suelo (arena, limo y especialmente de arcilla) es de fundamental importancia en este trabajo ya que los minerales que principalmente interactúan con los radionucleidos del suelo son aquellos que se encuentran en la fracción fina del suelo.

Las Tabla 4.9 muestra los porcentajes de arcilla, limo y arena determinados para los distintos suelos a diferentes profundidades, utilizando el método de la pipeta descrito en el Capítulo 3. En la Figura 4.13 se muestran los porcentajes determinados de arena, limo y arcilla en función de la

profundidad, incluyendo los valores publicados en la bibliografía (Capítulo 2) en forma de línea. La longitud utilizada para las líneas representa el espesor de suelo al cual fue asignado el correspondiente porcentaje (Gimenez et al., 2005, Hurtado et al., 2006a, b.). La clase textural fue determinada utilizando el triángulo textural (SSSA, 2008). Si bien los valores obtenidos no son comparables directamente con los publicados en la bibliografía debido a la diferencia en los espesores de suelo estudiados, se puede decir que los resultados presentan la misma tendencia que los publicados, lo que permitiría suponer que los suelos estudiados son representativos de cada una de las zonas.

Tabla 4.9: Análisis textural para muestras seleccionadas, según el suelo y la profundidad (x).

Código	x (cm)	Arcilla (%)	Limo (%)	Arena (%)	Clase textural
Zona de influencia continental - El Peligro					
EP-1	2,3	26,8	67,4	5,8	franco limosas/franco arcillo limosas
EP-4	9,4	27,6	66,5	5,9	franco arcillo limosas
EP-19	49,0	56,5	39,4	4,1	franco arcillo limosas/arcillosas
Zona de influencia continental – Arroyo Correa					
AC-1	1,8	15,1	64,1	20,8	franco arcillo limosa
AC-5	12,0	12,4	68,4	19,3	franco arcillo limosa
AC-14	41,5	12,0	69,5	18,5	franco arcillo limosa
Zona de influencia continental – Los Hornos					
LH-1	3,5	24,9	66,5	8,6	franco limosa
LH-2	7,0	27,0	65,9	7,2	franco arcillo limosa
LH-16	48,8	61,9	32,6	5,5	arcillosa
Zona de influencia Estuárico Marina – Villa Argüello					
VA-1	4,0	54,6	35,2	10,1	franco arcillo limosa
VA-3	10,5	61,2	27,9	11,0	franco arcillo limosa
VA-16	48,5	61,3	26,0	12,8	franco limosa
Zona de influencia Estuárico Marina – Parque Pereyra Iraola					
PP-1	3,0	53,7	44,2	2,1	arcillo limosa
PP-5	15,8	70,2	27,5	2,3	arcillosa
PP-16	44,8	60,4	32,8	6,8	arcillosa
Zona de influencia Estuárico Marina – Radio Provincia					
RP-1	3,5	18,6	44,1	37,4	franca
RP-4	14,0	28,5	48,9	22,7	franco arcillosa
RP-15	47,8	44,1	40,2	15,7	arcillosa/arcillosa limosa

La fracción de arena es la menos abundante y su porcentaje está en el mismo orden para todos los suelos, sin observarse diferencias significativas entre la zona de influencia estuárico marina y la continental. Sin embargo, los porcentajes de las fracciones de limo y arcilla varían en profundidad y con el tipo de suelo.

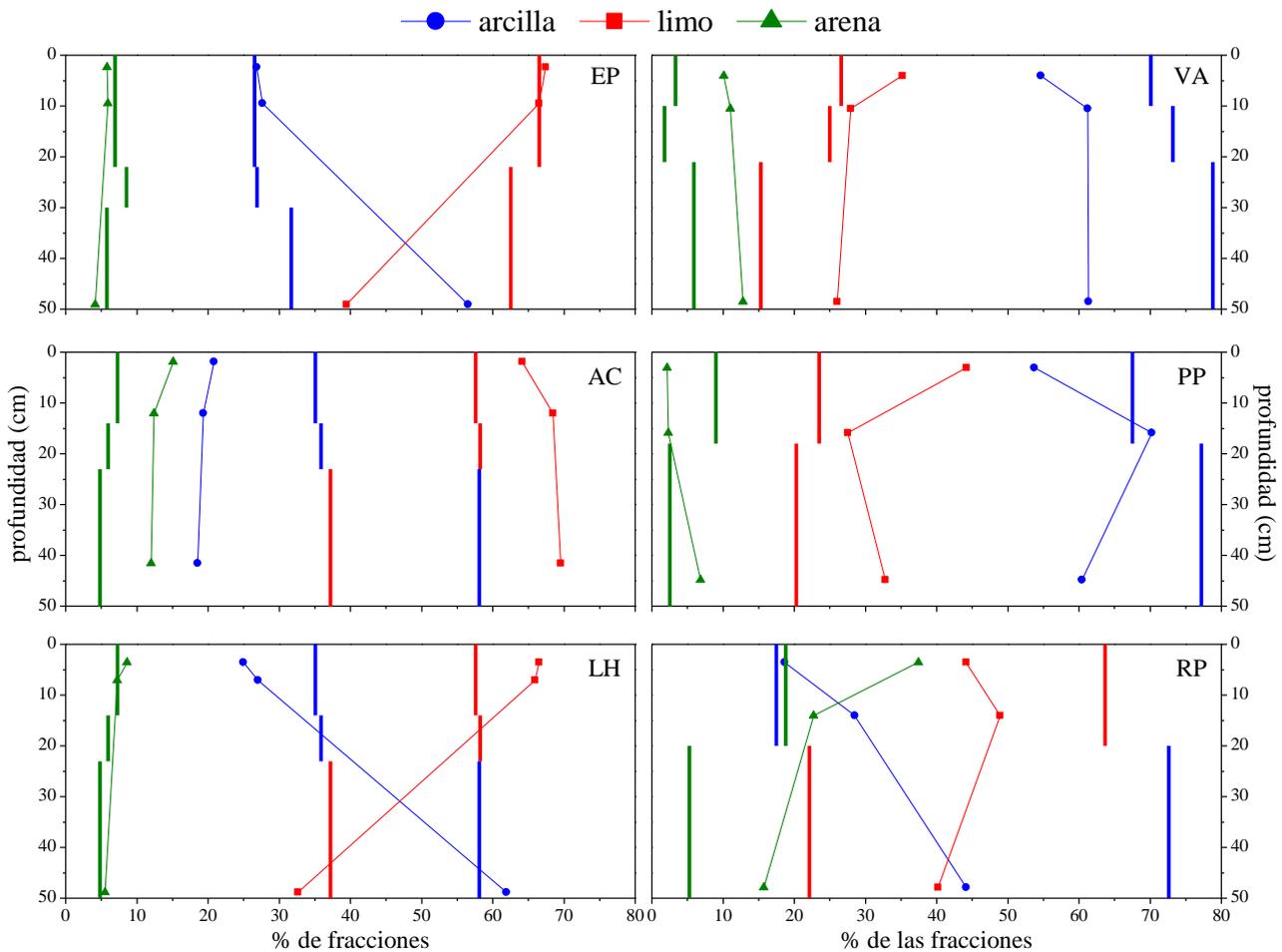


Figura 4.13: Los símbolos indican los porcentajes de arcilla (azul), limo (rojo) y arena (verde) determinados como función de la profundidad. Se incluyen en forma de línea los valores publicados en la bibliografía (Gimenez et al., 2005, Hurtado et al., 2006a, 2006b).

Las fracciones de arcilla obtenidas por separación en el análisis textural de las muestras presentadas en la Tabla 4.9 fueron caracterizadas radiológica, hiperfina y mineralógicamente. A continuación se presentan los resultados obtenidos.

4.4 Caracterización del suelo – muestras de arcilla

La arcilla es la fracción del suelo de mayor interés, ya que contiene minerales con cargas en sus superficies y con área superficial relativamente grande. Además, esta fracción es la que contiene los minerales donde pueden alojarse los radionucleidos naturales durante los procesos de formación del suelo y con los que interactúa principalmente el ^{137}Cs .

4.4.1 Análisis radiológico de la fracción de arcilla

Con el fin de analizar el grado de retención del ^{137}Cs y del ^{40}K por parte de la fracción de arcilla, se tomaron espectros gamma de dicha fracción. Las muestras seleccionadas para este estudio fueron aquellas que mostraron la mayor actividad de ^{137}Cs en las muestras crudas de cada perfil, analizándose un total de 6 muestras, una por perfil. La Figura 4.14 presenta la región de los espectros gamma donde se encuentran los fotopicos de ^{137}Cs y ^{40}K para las muestras investigadas. Sólo se consideran estos dos radionucleidos porque las medidas fueron realizadas sin alcanzar el equilibrio secular.

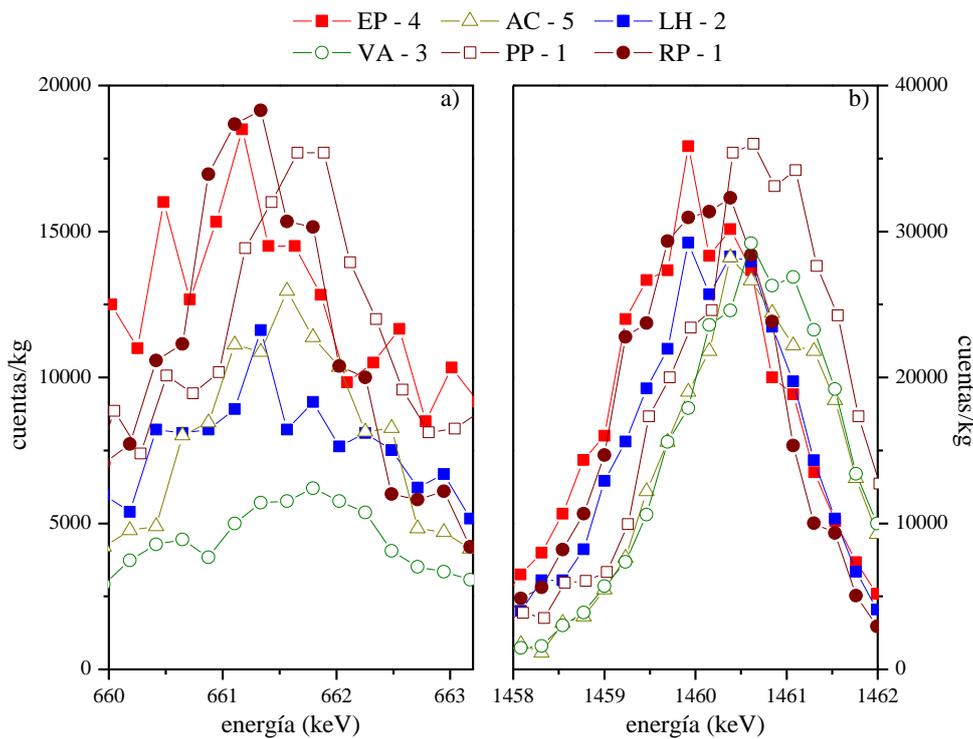


Figura 4.14: Regiones del espectro correspondientes a los fotopicos del ^{137}Cs (a) y ^{40}K (b) en las fracciones de arcilla.

Como puede verse, la fracción de arcilla contiene tanto ^{137}Cs como ^{40}K . Este hecho confirma que ambos radionucleidos están vinculados con los minerales presentes en esta fracción. La actividad en cada una de las muestras estudiadas es mostrada en la Tabla 4.10.

Tabla 4.10: Actividad de ^{40}K y ^{137}Cs en muestras selectas de la fracción de arcilla.

Suelo	^{40}K (Bq/kg)	^{137}Cs (Bq/kg)
EP-4	511±91	5±3
AC-5	386±32	5±1
LH-2	356±57	2±1
VA-3	413±34	1,9±0,8
PP-1	764±68	7±2
RP-1	434±42	8±2

4.4.2 Análisis hiperfino de la fracción de arcilla

Los espectros Mössbauer de la fracción de arcilla de las muestras seleccionadas (con mayor concentración de ^{137}Cs) se muestran en la Figura 4.15. Las líneas representan el ajuste al espectro y las contribuciones de las distintas interacciones consideradas según el código de colores descrito en las mismas. Los parámetros hiperfinos obtenidos de los ajustes a los datos experimentales se presentan en la Tabla 4.11.

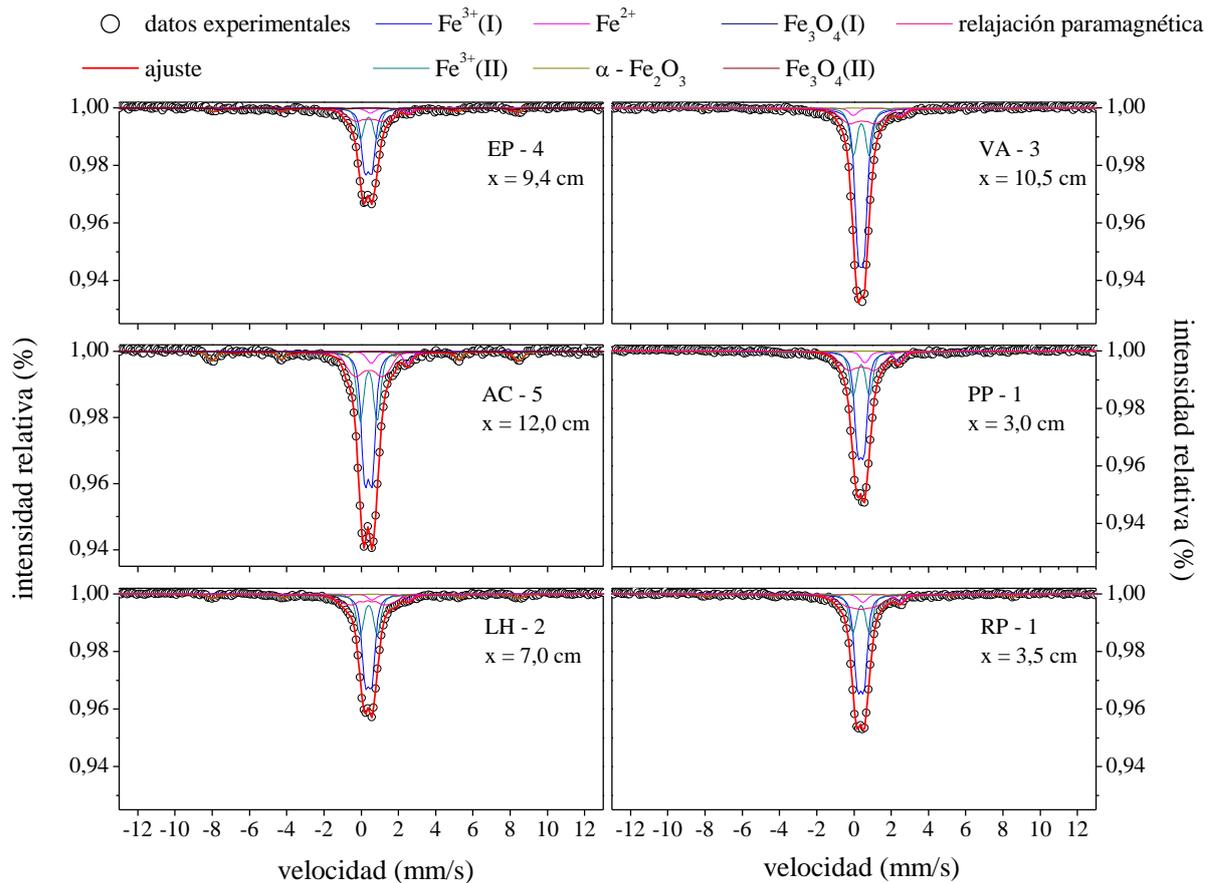


Figura 4.15: Espectros Mössbauer de muestras de arcillas seleccionadas, donde se obtuvo la máxima concentración de ^{137}Cs en la columna de suelo.

Tabla 4.11: Parámetros hiperfinos para diferentes muestras de arcilla. δ , Δ , ε y H representan el corrimiento isomérico, el desdoblamiento cuadrupolar, el corrimiento cuadrupolar y el campo magnético hiperfino, mientras que FR representa el porcentaje de fracción relativa de cada una de las fases.

Sitios paramagnéticos									
Código	Fe ³⁺ (I)			Fe ³⁺ (II)			Fe ²⁺		
	δ	Δ	FR (%)	δ	Δ	FR (%)	δ	Δ	FR (%)
EP-4	0,37 _{0,10} *	0,39 _{0,10} *	41±4	0,39 _{0,10} *	0,90 _{0,15} *	23±4	1,51 _{0,15} *	2,05 _{0,15} *	4±2
AC-5	0,37 _{0,10} *	0,40 _{0,10} *	41±2	0,39 _{0,10} *	0,90 _{0,10} *	25±2	1,50 _{0,15} *	1,97 _{0,15} *	5±1
LH-2	0,38 _{0,10} *	0,37 _{0,10} *	46±2	0,39 _{0,10} *	0,93 _{0,10} *	25±2	1,58 _{0,15} *	2,0 _{0,15} *	4±1
VA-3	0,37 _{0,10} *	0,33 _{0,10} *	56±2	0,39 _{0,10} *	0,86 _{0,15} *	23±2	1,24 _{0,15} *	2,57 _{0,15} *	4±1
PP-1	0,36 _{0,10} *	0,35 _{0,10} *	45±4	0,38 _{0,10} *	0,88 _{0,15} *	24±4	1,49 _{0,15} *	1,83 _{0,15} *	7±1
RP-1	0,35 _{0,10} *	0,36 _{0,10} *	48±3	0,37 _{0,10} *	0,89 _{0,10} *	23±2	1,48 _{0,15} *	2,02 _{0,15} *	6±1
Sitios magnéticos									
Código	α - Fe ₂ O ₃				Relajación paramagnética				
	δ (mm/s)	ε (mm/s)	H (T)	FR (%)	δ	H	FR (%)		
EP-4	0,41±0,08	-0,14±0,08	51,1 _{0,5}	4±2	0,41* _{0,10} *	6* ₂ *	22±3		
AC-5	0,35±0,04	-0,13±0,04	51,1 _{1,0}	8±1	0,40 _{0,15} *	6 _{1,5} *	19±2		
LH-2	0,40±0,04	-0,17±0,04	50,9 _{1,4}	7±1	0,35 _{0,10} *	8 ₂ *	17±2		
VA-3	0,41±0,22	-0,15±0,22	51,4 _{0,5} *	<1	0,44 _{0,10} *	6 ₂ *	16±2		
PP-1	0,38*	-0,1*	51* _{0,5} *	<1	0,40 _{0,15} *	6 ₂ *	23±2		
RP-1	0,38±0,09	-0,1*	51,1 _{0,8}	3±1	0,39 _{0,15} *	6* ₃ *	20±2		

Las fracciones relativas obtenidas de los ajustes a los espectros Mössbauer de las muestras de arcilla seleccionadas y de las muestras crudas presentaron algunas diferencias (ver Figura 4.16).

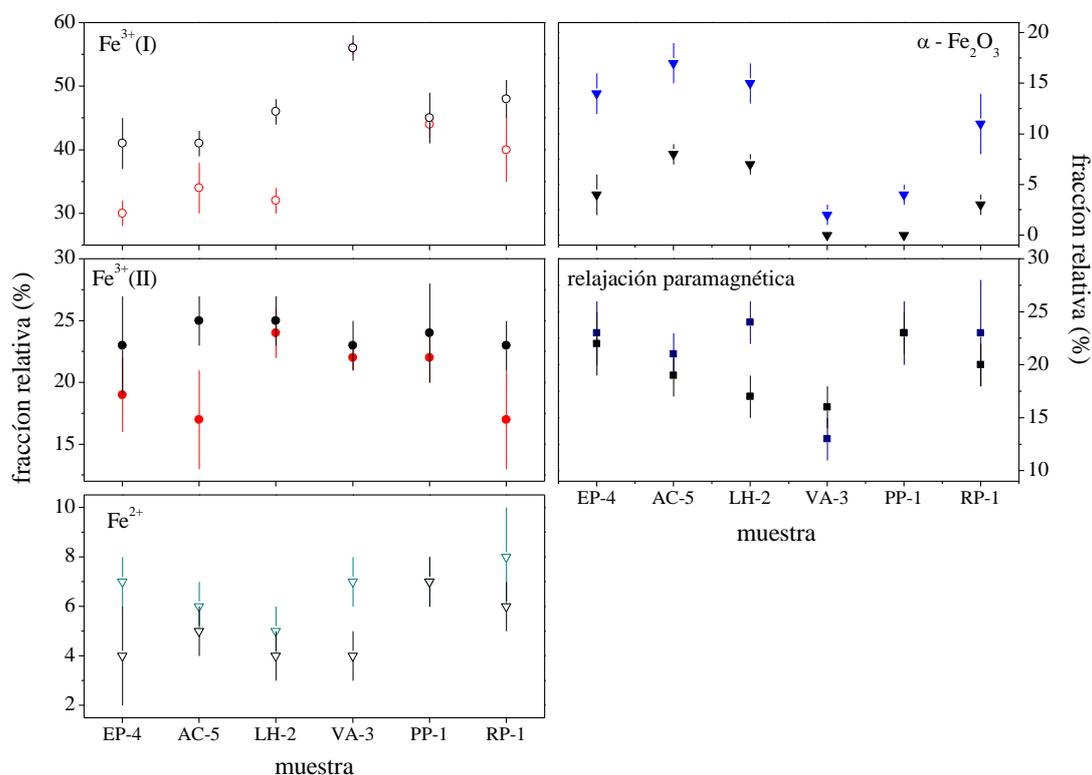


Figura 4.16: Fracciones relativas de las fases de Fe en las muestras crudas (símbolo de color) y en la fracción de arcilla (símbolo negro).

En cuanto a los sitios magnéticos se observó una disminución en las fracciones relativas de hematita en las muestras de arcillas en comparación con las muestras crudas. En ninguna de las arcillas se determinó la presencia de magnetita. En lo que respecta a las fases paramagnéticas, se encontraron los mismos sitios que para las muestras crudas, pero con una variación en las fracciones relativas de Fe³⁺ (Figura 4.16). En general, las fracciones relativas de Fe³⁺ en las muestras de arcilla son mayores a las determinadas en las muestras crudas. Los resultados obtenidos indican que la separación de las fracciones se realizó correctamente, ya que la magnetita y la hematita dominan en las fracciones gruesas del suelo, aunque podrían encontrarse cantidades traza en la fracción fina.

4.4.3 Fases cristalinas en la fracción de arcilla: Difracción de Rayos X

La identificación de los minerales en la fracción de arcilla se realizó acorde a lo expuesto en el Capítulo 3. La Figura 4.17 muestra los difractogramas obtenidos para la muestra EP-1. Mg hace referencia a las muestras homoionizadas con magnesio, Mg-G homoionizadas y glicoladas y Mg-C homoionizadas y calcinadas, además se indica las posiciones esperadas para las reflexiones asociadas a feldespato (F), illita (I), caolinita (Ka), cuarzo (Q) y esmectitas (Sm).

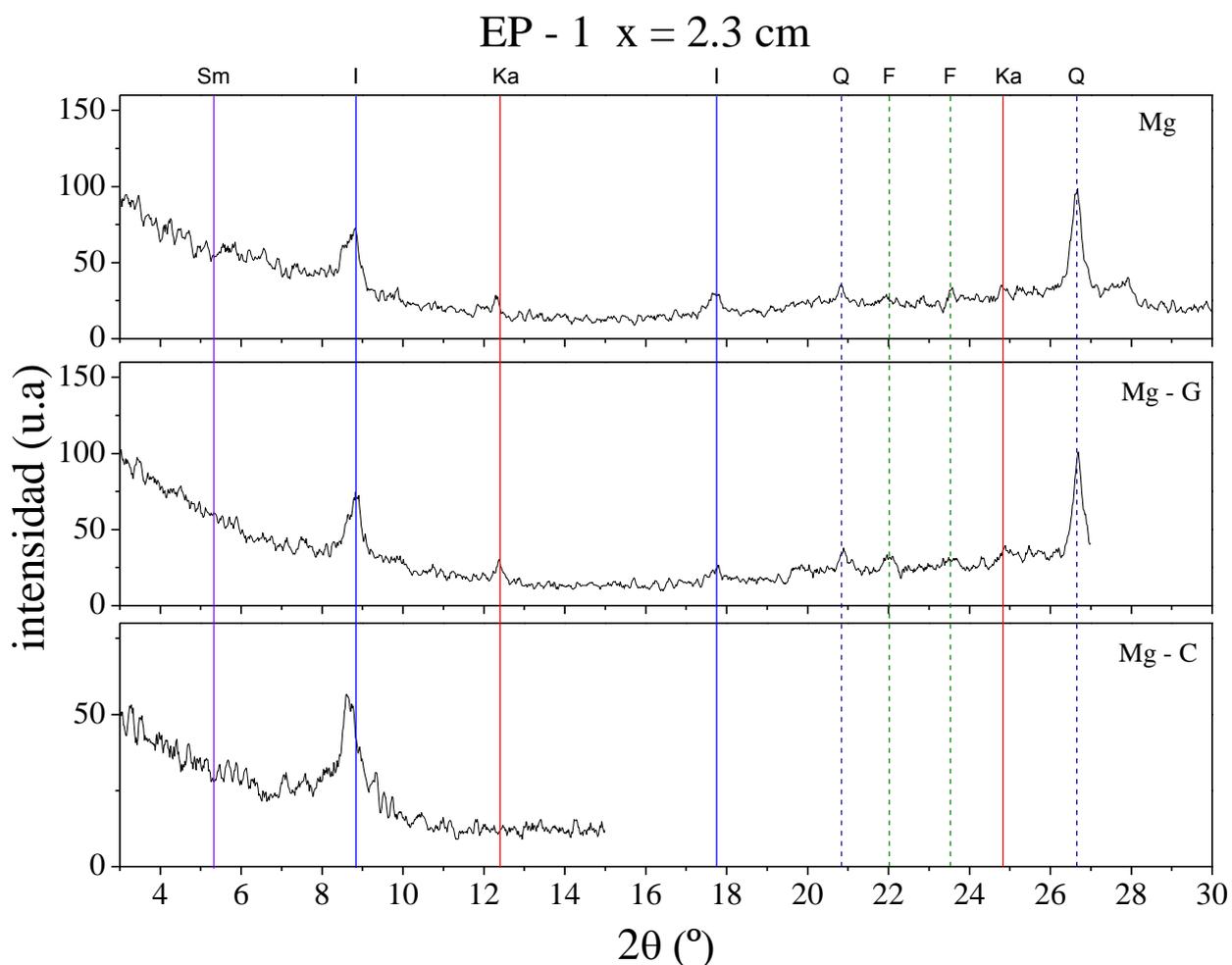


Figura 4.17: Difractogramas para la muestra superficial de El Peligro. Mg, Mg-G y Mg-C indican que la muestra fue homoionizada, homoionizada y glicolada y homoionizada y calcinada, respectivamente. Sm, I, Ka, Q y F representan esmectita, illita, caolinita, cuarzo y feldespato, respectivamente.

Para la caracterización semi cuantitativa de los difractogramas se llevaron a cabo ajustes de los datos considerando la presencia de esmectitas, illita, un interestratificado de illita-esmectita y caolinita. La reflexión del interestratificado considerado se localiza en la misma región angular que el pico generado por la presencia de illita. La presencia del primer se evidencia a partir de la asimetría en el lado izquierdo del pico cercano a los 9 \AA . A modo de ejemplo la Figura 4.18 muestra el ajuste de los difractogramas de las muestras del Parque Pereyra Iraola.

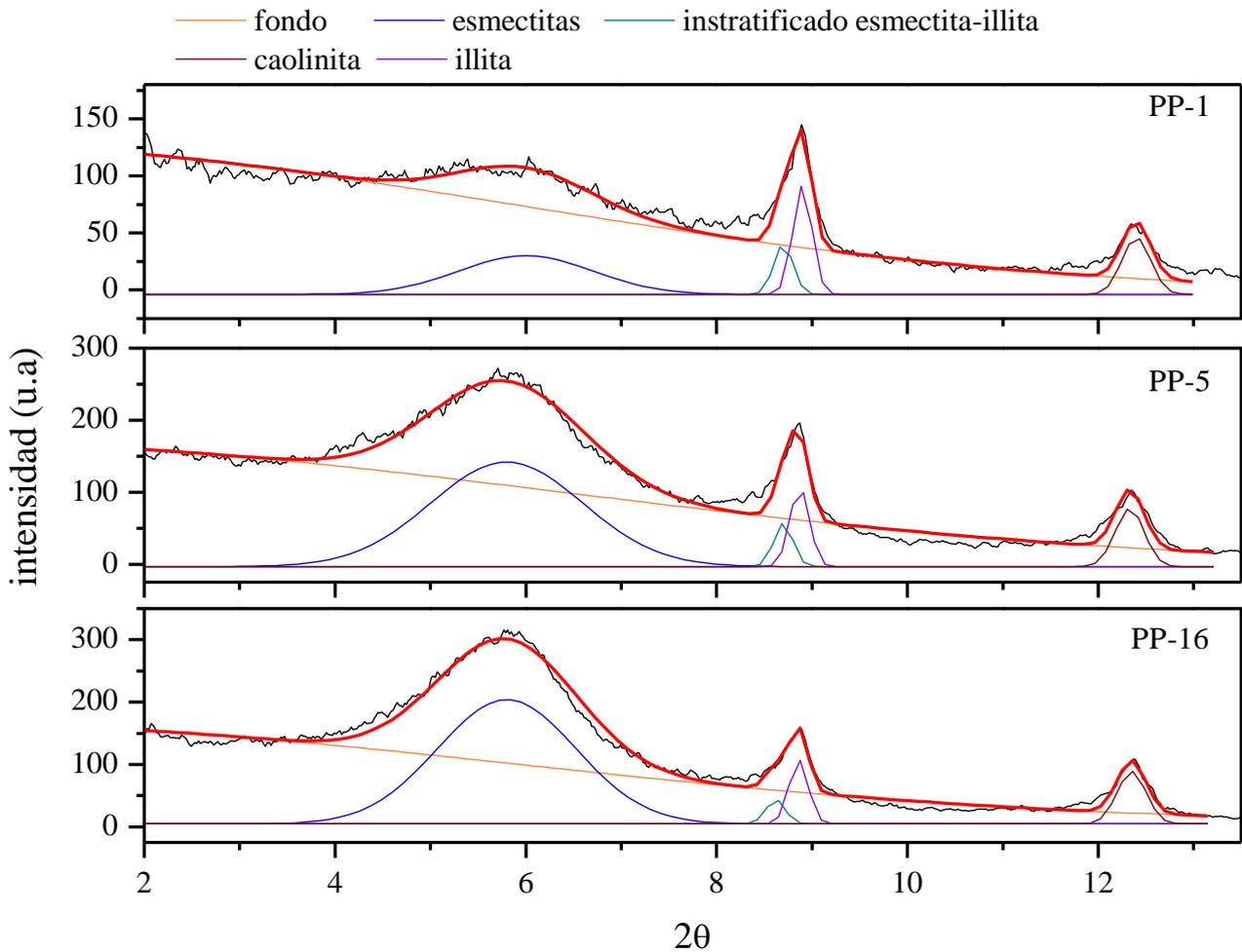


Figura 4.18: Análisis semi-cuantitativo de los difractogramas de los suelos de la zona del Parque Pereyra Iraola.

La Tabla 4.12 presenta los porcentajes de cada una de las fases encontradas en los distintos suelos. Se consideró que el interestratificado está formado por 80 % de illita y 20 % de esmectita. Si bien los valores obtenidos sugieren variaciones importantes en el contenido de las fases de arcilla consideradas, estos porcentajes son relativos y para una comparación más directa las fracciones deberían ser pesadas por el porcentaje de arcilla de cada una de las muestras.

Tabla 4.12: Análisis mineralógico según la zona y la profundidad (x). Sm, IS, I y Ka representan a las esmectitas, interstratificado illita-esmectita, illita y caolinita, respectivamente.

Zona de influencia	Suelo	Código	x (cm)	Sm (%)	IS (%)	I (%)	Ka (%)
Continental	El Peligro	EP-1	2,3	-	40	55	5
		EP-4	9,4	-	40	55	5
		EP-19	49,0	30	20	40	10
	Arroyo Correa	AC-1	1,8	-	40	55	5
		AC-5	12,0	-	30	65	5
		AC-14	41,5	-	20	75	5
		LH-1	3,5	-	35	55	10
	Los Hornos	LH-2	7,0	-	20	65	15
		LH-16	48,8	60	5	30	5
		VA-1	4,0	55	10	15	20
Estuárico Marina	Villa Argüello	VA-3	10,5	55	10	15	20
		VA-16	48,5	55	10	15	20
		PP-1	3,0	20	20	40	20
	Parque Pereyra	PP-5	15,8	55	15	20	10
		PP-16	44,8	60	10	20	10
		RP-1	3,5	60	15	15	10
	Radio Provincia	RP-4	14,0	75	10	10	5
		RP-15	47,8	70	10	15	5

Bibliografía

- Society of America, 2008. Glossary of Soil Science Terms. <https://www.soils.org/publications/soils-glossary>.
- SSSA, 2008. Methods for Soil Analysis. Part 5 – Mineralogical methods. Inc. Madison, Wisconsin, USA.
- Poinssot, C., Baetens, B., Bradbury, M.H., 1999. Experimental and modelling studies of caesium sorption on illite. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63, 19/20, 3217–3227.
- Tauxe, L., 2005. Lectures in Paleomagnetism. <http://earthref.org/MAGIC/books/Tauxe/2005/>
- Murad, E., 2010. Mössbauer spectroscopy of clays, soils and their mineral constituents. *Clay Minerals*, 45, 413-430.
- Murad, E., Wagner, U., 1998. Clays and Clays mineral: the firing process. *Hyperfine Interactions*, 117, 337-356.
- Gimenez, J.E., Cabral, M.G., Hurtado, M.A., 2005. Elaboración y Transferencia de cartografía Temática e Implementación de un Sistema de Información Geográfica para el Planeamiento (Partido de Berisso). Comisión de Investigaciones Científicas de la Provincia de Buenos Aires. Ed. Universidad Nacional de La Plata.
- Hurtado, M.A., Giménez, J.E., Cabral, M.G., 2006a. Análisis ambiental del partido de La Plata. Aportes al ordenamiento territorial. Consejo Federal de Inversiones. Ed. Universidad Nacional de La Plata.
- Hurtado, M.A., Giménez, J.E., Cabral, M.G., 2006b. Suelos del partido de Berazategui como base para el planeamiento ambiental y ordenamiento territorial. Contrato de Obra entre Consejo Federal de Inversiones y Facultad de Ciencias Naturales y Museo. Ed. Universidad Nacional de La Plata.

Capítulo 5: Discusión

Para una mejor organización de la discusión de los resultados obtenidos, la misma será abordada en tres partes. Por un lado se exponen las principales observaciones extraídas sobre las propiedades fisicoquímicas, magnéticas, hiperfinas y mineralógicas de los distintos suelos. Por otro, se analizan los resultados obtenidos de actividad de los radionucleidos naturales, analizando sus variaciones en profundidad y espacio, para luego correlacionarlas con las propiedades de los suelos. Además se presentan los valores obtenidos para la tasa de dosis absorbida y la dosis efectiva anual equivalente. Finalmente, se consideran los perfiles de actividad del ^{137}Cs , analizando los parámetros resultantes de ajustarlos con los modelos de transporte presentados en el Capítulo 1. Asimismo, se analizan los inventarios y la contribución a la tasa de dosis y dosis anual efectiva equivalente de este radionucleido.

5.1 Propiedades de los suelos

La presente sección resume las principales observaciones extraídas sobre las propiedades fisicoquímicas, magnéticas, hiperfinas y mineralógicas de los distintos suelos y aborda la búsqueda de correlaciones entre los parámetros obtenidos con las distintas técnicas.

Como fuera mencionado en el Capítulo 4, no se encontraron diferencias significativas en los perfiles de % de C_{org} de los suelos estudiados, mientras que si fueron observadas diferencias para los perfiles de pH. Este parámetro depende, entre otros factores, de las concentraciones de sodio y carbonatos en el suelo, por lo tanto las variaciones en los perfiles podrían estar relacionadas con variaciones de concentración de dichos elementos en el suelo. En general, los suelos pertenecientes a la zona de influencia continental presentan menor pH que los pertenecientes a la zona de influencia estuárico marina, excepto el suelo de la región de Arroyo Correa, donde en las capas más profundas los valores de pH se acercan a los determinados en la zona próxima a la costa.

Continuando con los resultados de las propiedades magnéticas de los suelos, la Figura 5.1 muestra la distribución en profundidad de M_s , χ_{hifi} y χ_{hifi}/M_s . Del análisis de los valores obtenidos de magnetización de saturación se puede concluir que los suelos pertenecientes a la zona de influencia estuárico marina contienen menor concentración de material magnético que los pertenecientes a la zona de influencia continental. Además, la pequeña variación con la profundidad de dicho parámetro sería indicativa de ligeras variaciones en la concentración del material magnético con la profundidad, con excepción del suelo de la región de Arroyo Correa.

Por su parte, y a partir de los datos de susceptibilidad de alto campo (χ_{hifi}), es de esperarse que los suelos de Villa Argüello y Parque Pereyra contengan mayor concentración de minerales paramagnéticos, dado que presentan un valor de χ_{hifi} mayor que los suelos restantes. Este hecho también se ve reflejado en el comportamiento con la profundidad del cociente x_{hifi}/M_s Figura 5.1 c). Para el resto de los suelos la susceptibilidad de alto campo es prácticamente constante hasta los 20 cm de profundidad, aumentando luego para mayores profundidades.

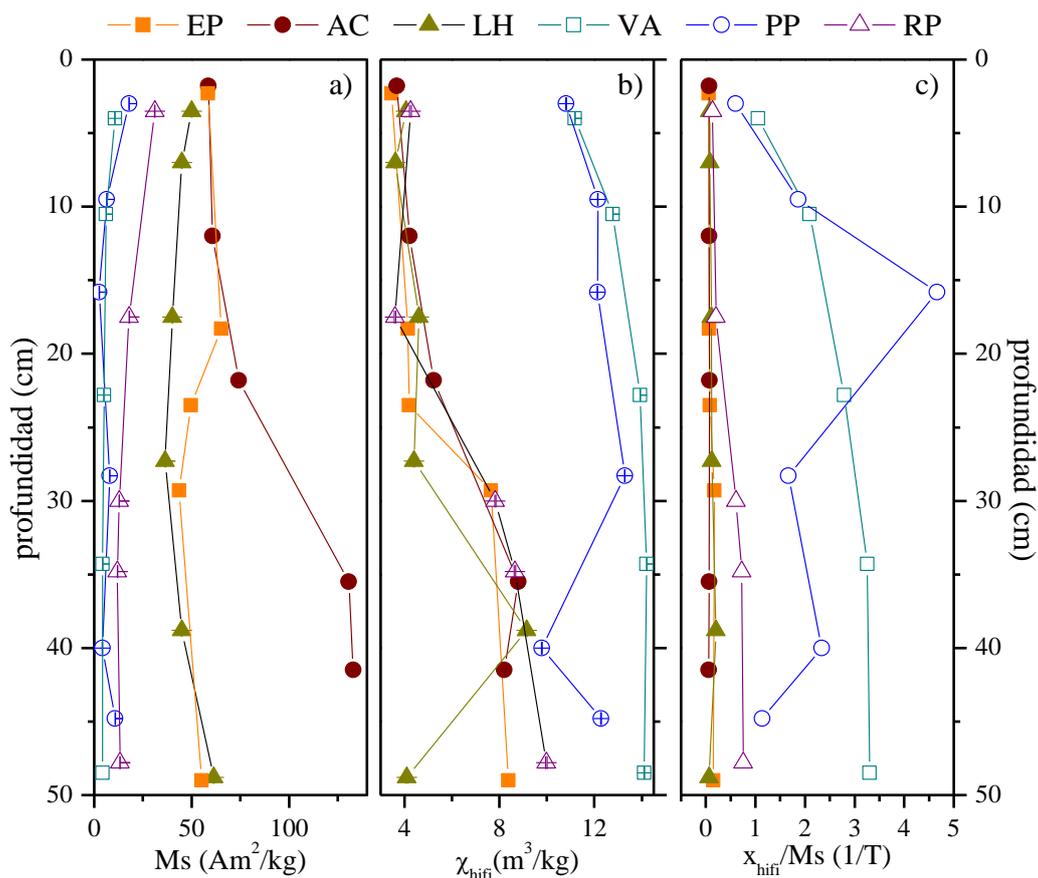


Figura 5.1: Perfiles de a) magnetización de saturación, b) susceptibilidad magnética de alto campo y c) cociente entre la susceptibilidad de alto campo y la magnetización de saturación. Los colores representan las distintas zonas estudiadas.

La Figura 5.2 muestra la distribución en profundidad de las fracciones relativas obtenidas del ajuste de los espectros Mössbauer para los distintos sitios de Fe considerados. Como puede verse, en todos los casos la fracción relativa más alta corresponde al denominado $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$, siguiéndole la correspondiente a la relajación paramagnética. La presencia de magnetita sólo fue tomada en cuenta para el ajuste de los espectros de las muestras de los suelos de El Peligro y Arroyo Correa. Las fracciones relativas determinadas para los sitios de Fe en los suelos de Villa Argüello no mostraron variaciones significativas con la profundidad, mientras que para el resto de los suelos se observa un aumento en la fracción relativa de $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$ a partir de, aproximadamente, los 20 cm de profundidad.

Para la mayoría de los casos, el aumento de esta fracción es a expensas o bien de la disminución de la fracción de la componente de relajación súper paramagnética o de la de hematita. Como puede verse, las fracciones relativas más pequeñas en los suelos pertenecientes a la zona de influencia continental son las correspondientes al Fe^{2+} y magnetita, mientras que para los suelos de la zona estuárico marina la hematita es el sitio de menor fracción relativa.

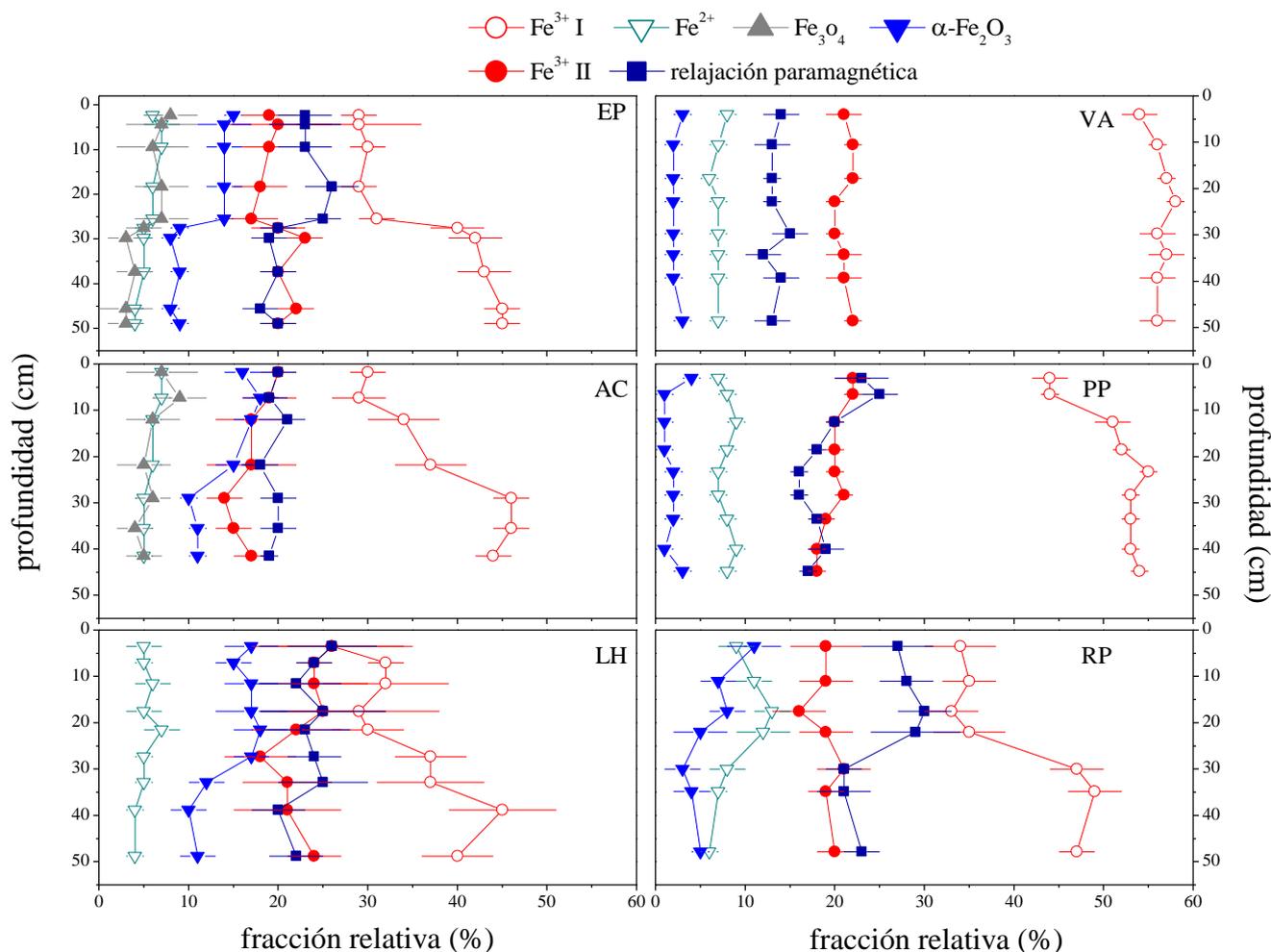


Figura 5.2: Perfiles de fracción relativa de los sitios utilizados para ajustar los espectros Mössbauer de las muestras crudas de suelo.

En cuanto a la textura se observa que los suelos de las regiones de El Peligro y Los Hornos presentan características similares. Es decir, en superficie la fracción dominante es la de limo, con valores cercanos al 65%, mientras que para mayores profundidades se hace más importante la fracción de arcilla. Si bien la fracción de arcilla para las muestras de la zona de Radio Provincia tiene un comportamiento similar a los dos anteriores, la fracción de limo permanece relativamente constante con la profundidad y representa menos del 65%. Por su parte, en las regiones de Arroyo Correa y Villa Argüello, no se observa aumento de la fracción de arcilla con la profundidad.

Asimismo, para las regiones de Villa Argüello y Parque Pereyra Iraola la fracción dominante es la de arcilla, con valores relativamente altos.

La comparación de los parámetros hiperfinos obtenidos a partir del ajuste a los espectros Mössbauer tomados para las muestras crudas y para las correspondientes a las fracciones de arcilla muestra que el material paramagnético de la muestra cruda, también presente en la fracción de arcilla, no fue modificado por el proceso de separación de las fracciones.

Si se consideran conjuntamente los resultados del análisis textural y los del análisis mineralógico, se puede obtener una estimación del porcentaje total de las arcillas en el suelo. Para el caso particular de la illita, se consideran conjuntamente la fase pura y el interestratificado (80% de illita). Los resultados se presentan en la Tabla 5.1 y son esquematizados en la Figura 5.3.

Tabla 5.1: Porcentajes totales de esmectita (Sm), illita (I) y caolinita (Ka), según el suelo y la profundidad (x).

Código	x (cm)	Sm (% _{tot})	I (% _{tot})	Ka (% _{tot})
EP-1	2,3	-	23	1
EP-4	9,4	-	24	1
EP-19	49,0	17	32	6
AC-1	1,8	-	13	1
AC-5	12,0	-	11	1
AC-14	41,5	-	11	2
LH-1	3,5	-	21	3
LH-2	7,0	-	22	4
LH-16	48,8	37	21	3
VA-1	4,0	30	13	11
VA-3	10,5	34	14	12
VA-16	48,5	34	14	12
PP-1	3,0	11	30	11
PP-5	15,8	39	23	7
PP-16	44,8	36	17	6
RP-1	3,5	11	5	2
RP-4	14,0	21	5	1
RP-15	47,8	31	10	2

En general, se observa que en los suelos pertenecientes a la zona de influencia estuárico marina domina la esmectita, con excepción de la muestra superficial de Parque Pereyra Iraola. Por otro lado, en los suelos continentales el mineral dominante es la illita, exceptuando la muestra de suelo de Los Hornos de mayor profundidad. Asimismo, el suelo de la región del Parque Pereyra Iraola es el que mayor contenido de illita presenta.

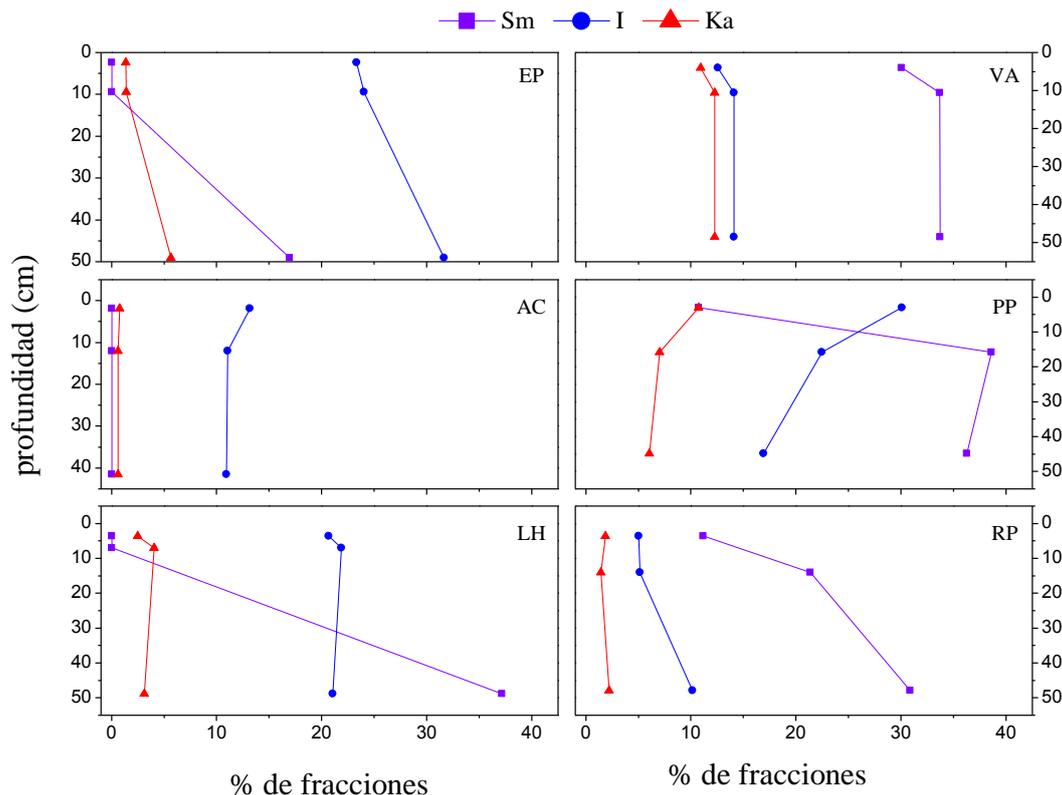


Figura 5.3: Porcentajes de esmectitas, illita y caolinita, pesados por la correspondiente fracción de arcilla.

Resumiendo, se puede decir que existen diferencias magnéticas, estructurales e hiperfinas entre los suelos estudiados. Los suelos pertenecientes a la zona de influencia continental presentan mayor concentración de material magnético que los de la zona costera y, si bien en todos se observa la presencia de magnetita (medidas VSM), en los suelos de El Peligro y Arroyo Correa se espera que esté en mayor concentración, ya que esta fase se detecta también mediante espectroscopia Mössbauer. Por otra parte, los suelos pertenecientes a la zona de influencia continental y el suelo de la zona de Radio Provincia presentan menor porcentaje de fracción fina. En particular, en los pertenecientes a la zona de influencia continental los porcentajes de esmectitas son relativamente bajos. Además, en todos los suelos se observó la presencia de illita y caolinita, siendo esta la menos variable en profundidad y espacio. El mayor porcentaje de illita fue determinado para el suelo del Parque Pereyra Iraola y el menor en la región de Radio Provincia. En cuanto a las propiedades físico-químicas, se observa que los perfiles y magnitudes % de C_{org} son similares para todos los suelos y, dado los niveles de pH, podría esperarse un mayor nivel de carbonatos y sales de Na para los suelos pertenecientes a la zona de influencia estuárico marina.

5.1.1 Correlación entre los parámetros obtenidos con las distintas técnicas de caracterización del suelo

Al comparar los parámetros hiperfinos de las fases de Fe determinadas por espectroscopía Mössbauer y los parámetros hiperfinos esperados para las fases determinadas con la utilización de DRX en la fracción de arcilla, se ve que los resultados concuerdan. Los sitios correspondientes a Fe^{3+} (determinados por espectroscopía Mössbauer) pueden ser asignados a la suma de las contribuciones de la caolinita, la illita y la montmorillonita (según los datos de la literatura resumidos en la Tabla 1.1, Tabla 1.2 y Tabla 1.3) mientras que el sitio de Fe^{2+} muestra características hiperfinas compatibles con la presencia de illita pura (Tabla 1.2). En este sentido, cabe mencionar que los parámetros hiperfinos presentados en las Tablas 1.1 a 1.3 corresponden a minerales sintéticos. Por otro lado, en la bibliografía se presentan espectros Mössbauer de esmectitas naturales que debieron ser ajustados utilizando también un sitio de Fe^{2+} (Johnson y Cardile, 1987; Marco-Brown et al., 2012). Por este motivo no puede ser descartado que exista una contribución al sitio de Fe^{2+} tanto de illita como de esmectita.

Por otro lado, la determinación de fracciones relativas más altas para el sitio $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$ en los suelos de Villa Argüello y el Parque Pereyra Iraola está acorde con los mayores valores de susceptibilidad de alto campo determinado en dichos suelos. De hecho, el comportamiento en profundidad para estas dos variables es similar, como también se observa para el resto de los suelos. La Figura 5.4 muestra la susceptibilidad de alto campo en función de la fracción relativa de $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$ para todos los suelos y todas las muestras analizadas. Al observar la figura se desprende que existiría una correlación entre ambos parámetros, hecho reforzado al evaluar el coeficiente de correlación de Pearson entre ambas variables cuyo valor resultó igual a 0,945. Es decir, la correlación entre la susceptibilidad de alto campo y la fracción relativa de $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$ es muy significativa y positiva. Así la determinación de la susceptibilidad de alto campo podría utilizarse como una medida rápida de la presencia de material paramagnético en suelos, hecho que resulta muy útil cuando se desea estudiar la interacción de contaminantes con este tipo de materiales.

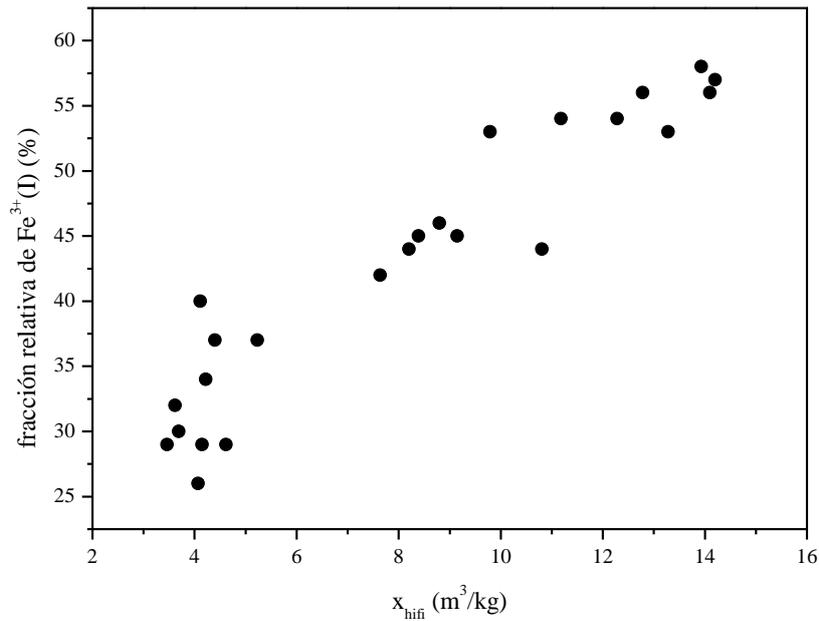


Figura 5.4: Susceptibilidad de alto campo vs fracción relativa de la fase de $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$.

La susceptibilidad magnética de alto campo también puede ser relacionada con los minerales paramagnéticos presentes en el suelo (ver Capítulo 1). Analizando los resultados obtenidos en el presente trabajo, podría decirse que los valores más altos para χ_{hifi} determinados en los suelos de Villa Argüello y Parque Pereyra se debe al mayor contenido de esmectitas en dichos suelos.

La Figura 5.5 muestra los porcentajes de Sm, I y la suma de ambos como función de la susceptibilidad magnética de alto campo para todos los suelos. Al determinar el coeficiente de correlación de Pearson entre las variables involucradas, se obtiene que entre la illita y la χ_{hifi} no existe una correlación significativa, mientras que el coeficiente determinado entre la esmectita y la χ_{hifi} es significativo y positivo, con un valor de 0,77. Por lo tanto, la medición de la susceptibilidad magnética de alto campo, fácil y rápida de realizar, podría servir como indicativa del posible contenido de esmectita en suelo. Para poder arribar una conclusión más clara acerca de la correlación entre χ_{hifi} y la fase de arcilla presente sería necesario llevar a cabo más estudios.

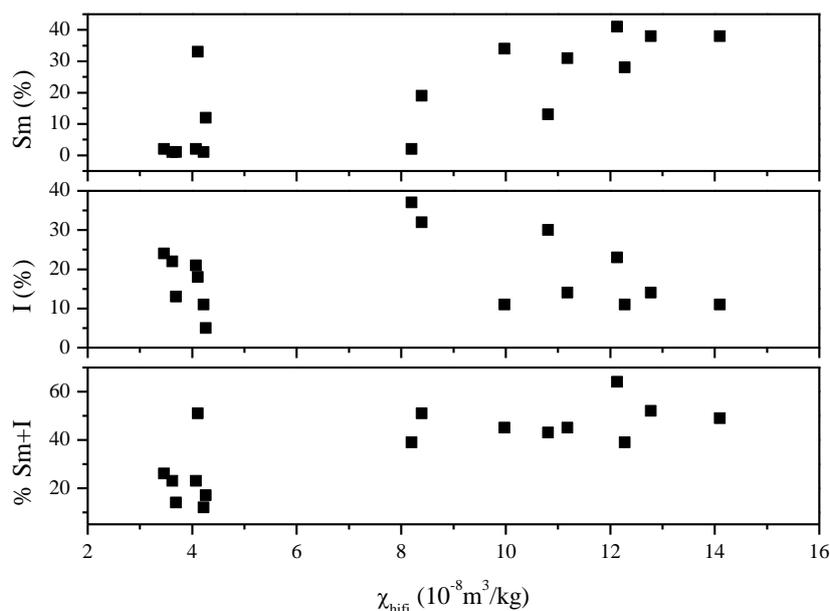


Figura 5.5: Porcentajes de esmectita (Sm), illita (I) y la suma de ambos como función de la susceptibilidad magnética de alto campo.

5.2 Actividad de radionucleidos naturales

En la presente sección se analizarán los resultados obtenidos de actividad de los radionucleidos naturales, estudiando sus variaciones en profundidad y espacio, para luego correlacionarlas con las propiedades de los suelos. Además se presentarán los valores obtenidos para la tasa de dosis absorbida y la dosis efectiva anual equivalente.

5.2.1 Cadena del ^{232}Th

5.2.1.1 Perfiles de Actividad

La Figura 5.6 muestra los perfiles de actividad de la cadena del ^{232}Th , junto con el valor medio establecido para cada uno de los suelos. Los resultados indican que, para la mayoría de los suelos, no se observan variaciones significativas con la profundidad. Si bien el perfil determinado para la zona de Radio Provincia parecería mostrar un aumento de la actividad con la profundidad, los errores asociados son relativamente grandes y las medidas no se apartan más de una desviación estándar del valor medio establecido. La baja variabilidad de la actividad de la cadena del ^{232}Th en profundidad podría deberse a que la gran mayoría de las sales de Th son insolubles (Coppens, 1979).

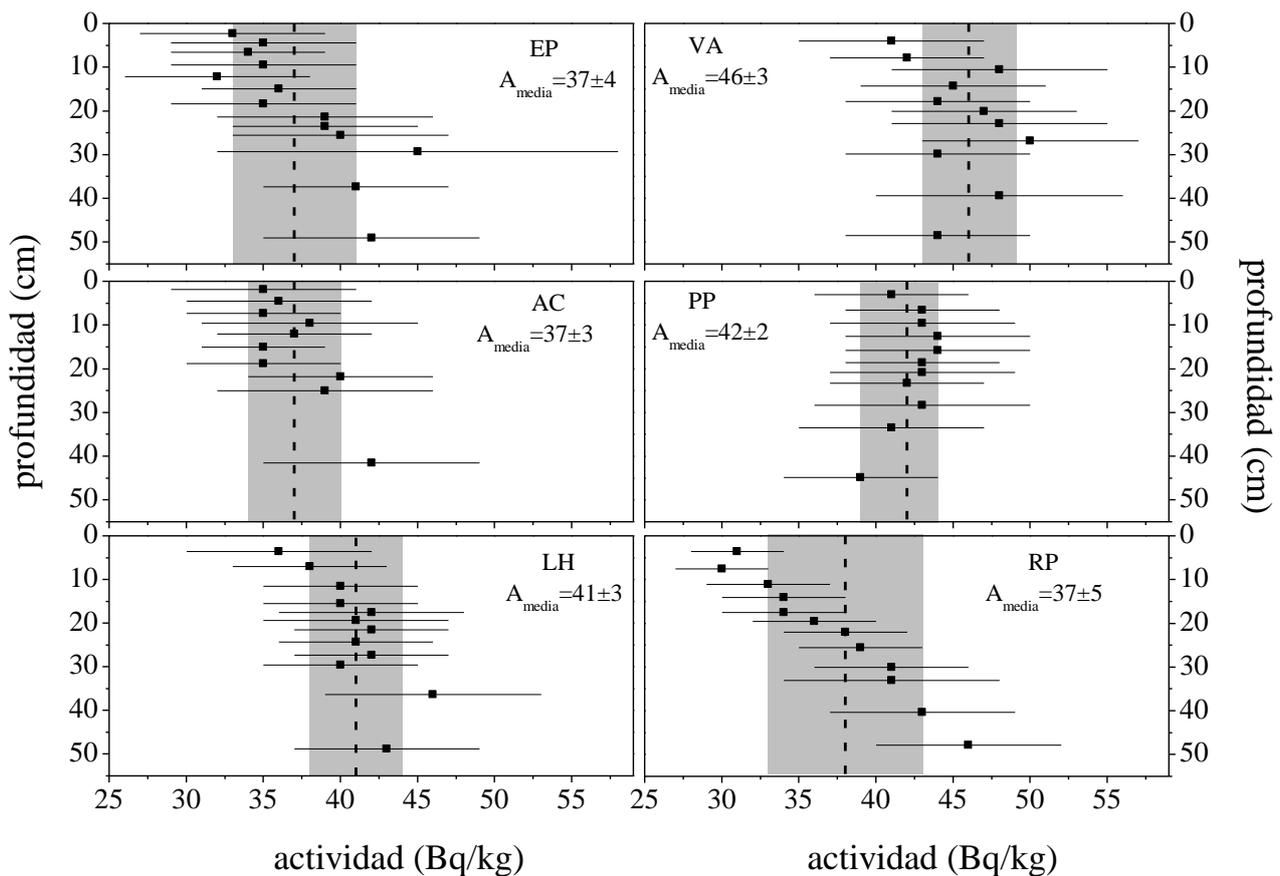


Figura 5.6: Perfiles de actividad de la cadena del ^{232}Th . La línea punteada indica el valor medio de la actividad (Bq/kg) en la columna de suelo, mientras que en la zona gris indica el error de dicho valor.

Con el objetivo de analizar si los valores medios determinados para cada uno de los suelos son similares entre sí, se analizó la posibilidad de realizar un test ANOVA, para lo que se requiere que los datos sean independientes y que los errores presenten homogeneidad en las varianzas (Walpole et al., 1999). Dado que las actividades son determinadas en suelos diferentes, la primera condición se cumple. Para constatar la segunda condición se realizó el gráfico de diagnóstico (ver Figura 5.7) y la prueba de Bartlett (Walpole et al., 1999) y se determinó, con un 95% de confianza, que al menos una de las varianzas de los errores difería significativamente con las demás. Asimismo, no se observó una tendencia en la distribución de las varianzas con la media de la actividad, por lo que no se puede efectuar una transformación de los datos para realizar el test. Sin embargo, cuando se consideraron por separado los datos de la zona continental y los de la zona estuárico marina, se encontró que los datos obtenidos de los suelos de la primera de ellas si tenían, con un 95% de confianza, varianzas iguales en sus errores. Por lo tanto se realizó un test ANOVA para comparar los valores medios sólo en la región de influencia continental. El resultado fue, con un 95 % de confianza, que no todas las medias eran iguales y se determinó mediante el test de Tukey (Walpole et al., 1999) que las medias correspondientes a El Peligro y Arroyo Correas eran iguales entre sí y

distintas a la determinada para Los Hornos. Por lo tanto, no se puede establecer un valor medio de actividad de la cadena del ^{232}Th para los suelos pertenecientes a la zona de influencia continental.

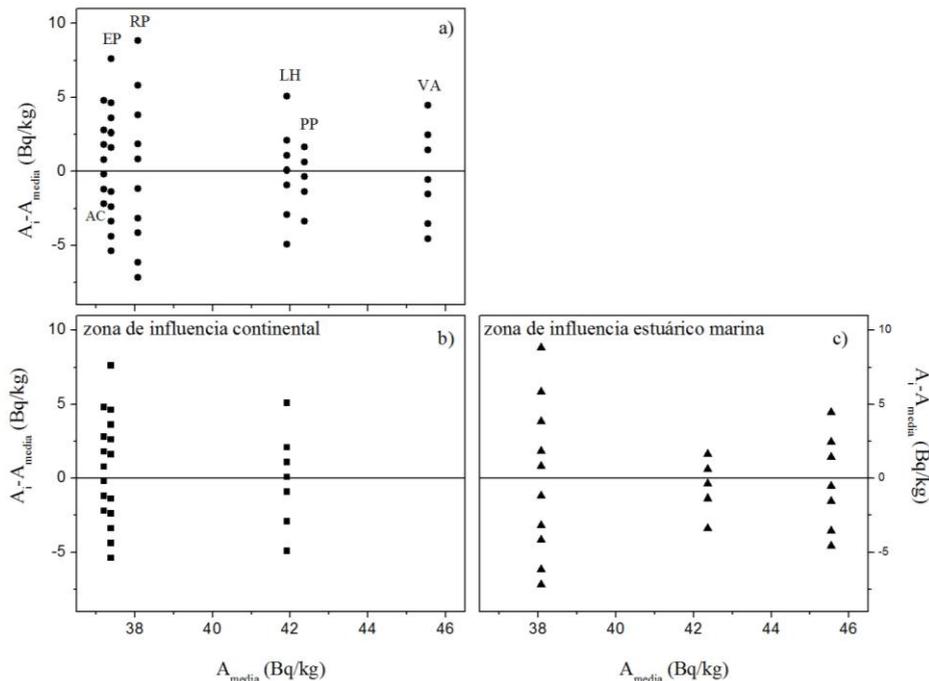


Figura 5.7: Gráfico de diagnóstico de homogeneidad de las varianzas de los errores de actividad del ^{232}Th .

5.2.1.2 Relación de la actividad del ^{232}Th con las fases de Fe y los minerales presentes en el suelo

A fin de analizar si existe relación entre la actividad de la cadena del ^{232}Th con los minerales presentes en el suelo se calcularon los coeficientes de correlación de Pearson entre los porcentajes de las fases minerales y la actividad de dicho radionucleido. Los resultados se presentan en la Tabla 5.2. Como puede verse, existe una correlación significativa y positiva entre la actividad del Th y las esmectitas y la caolinita, mientras que no se observa relación con el porcentaje de illita. Esto indicaría que los radionucleidos pertenecientes a esta cadena no están interactuando en forma significativa con dicho mineral. Por otro lado, la correlación significativa con los otros dos minerales sugeriría que los radionucleidos de la cadena del torio interactuarían con esos minerales, pero con los resultados aquí presentados no puede establecerse en qué forma. Para determinar esto, deberían hacerse estudios adicionales, como puede ser la determinación de isotermas de absorción de los radionucleidos involucrados en la caolinita y las esmectitas.

Tabla 5.2: Coeficientes de correlación de Pearson, r , entre la actividad de la cadena del ^{232}Th y los porcentajes de las fases minerales determinadas por DRX. ND indica el nivel de significancia y D la decisión si la relación es significativa (s) o no significativa (ns).

	r	NS	D
I	0,200	0,424	ns
Sm	0,711	0,0009	s
Ka	0,602	0,008	s

Siguiendo con el análisis de correlación se calcularon los coeficientes de correlación de Pearson entre la actividad de la cadena del ^{232}Th y las fracciones relativas de las fases de Fe. Los resultados se muestran en la Tabla 5.3. Como puede verse, la actividad está correlacionada en forma negativa y significativa con las fracciones relativas de magnetita y hematita. Esto podría deberse a que estos minerales no presentan intercapas donde los radionucleidos puedan alojarse. Por otro lado, la actividad sólo muestra una relación significativa positiva con el sitio denominado $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$. Como fuera mencionado anteriormente, el sitio $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$ está compuesto por las contribuciones provenientes de la presencia de caolinita, illita y esmectita. Así, ambos resultados, correlación de la actividad de ^{232}Th con $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$ y con esmectita+ caolinita, son concordantes.

Tabla 5.3: Coeficientes de correlación de Pearson entre la actividad de ^{232}Th y las fases de Fe. Se incluyen los niveles de significancia (NS) y la decisión (D) si la correlación es significativa (s) o no (ns).

	r	NS	D
$\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$	-0,559	$1,5*10^{-4}$	s
Fe_3O_4	-0,853	$2*10^{-4}$	s
$\text{Fe}^{3+}(\text{I})$	0,743	$2,6*10^{-8}$	s
$\text{Fe}^{3+}(\text{II})$	0,307	0,051	ns
$\text{Fe}^{3+}\text{total}$	0,785	$1,2*10^{-9}$	s
Fe^{2+}	-0,294	0,062	ns

5.2.1.3 Actividad de la cadena del ^{232}Th en suelos superficiales

La Figura 5.8 presenta las actividades determinadas para las muestras tomadas en superficie (cuadrados abiertos), incluyendo los datos obtenidos para la zona de Ezeiza y las actividades medias de la cadena del ^{232}Th determinadas a partir de los perfiles (cuadrados negros). Como puede verse de la Figura, las actividades determinadas para la región de La Plata están en el mismo orden de magnitud y el intervalo de actividades determinado en superficie es de 30 Bq/kg a 46 Bq/kg. Las actividades determinadas para los suelos de la región de La Plata son similares a las establecidas en las muestras recolectadas en la región de Ezeiza. Todas las actividades resultaron comparables con el valor medio mundial (línea negra en la Figura 5.8) (UNSCEAR, 2008) y quedaron dentro del intervalo de valores publicados para suelos uruguayos (Odino Moure, 2010). Contrariamente, los resultados son notoriamente menores a los valores establecidos para los suelos estudiados de la región de Sertao, Brasil (Malanca y Gaidolfi, 1996).

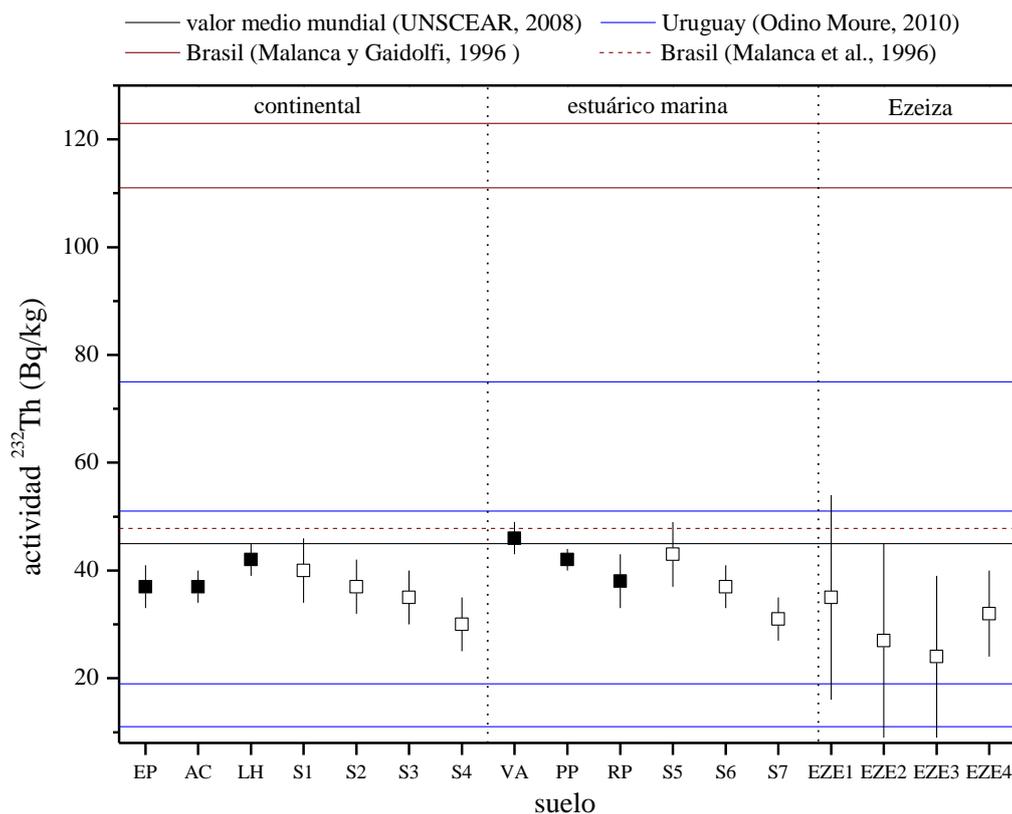


Figura 5.8: Actividad media de la cadena del ^{232}Th para las muestras superficiales (cuadrados abiertos) y los valores medios determinados para los perfiles de suelo (cuadrados negros). Se incluyen valores en suelos de Brasil y Uruguay y el valor medio mundial.

5.2.2 Cadena del ^{238}U : actividad del ^{226}Ra

5.2.2.1 Perfiles de actividad

En los suelos pertenecientes a la zona de influencia continental y en el de Radio Provincia la actividad del ^{226}Ra no muestra variaciones significativas con la profundidad. Sin embargo, si se observa una variación en los suelos de Villa Argüello y el Parque Pereyra Iraola (ver Figura 5.9). A fin de evaluar los factores que afectan la distribución del ^{226}Ra , es necesario comprender la geoquímica de este elemento en los suelos. El Ra existe en el ambiente típicamente como un catión divalente, Ra^{2+} , pudiendo formar complejos acuosos con iones sulfatos o carbonatos. La información disponible en la bibliografía acerca del contenido de carbonatos en los suelos estudiados indica que aquellos pertenecientes a la zona de influencia continental no presentan cantidades apreciables de carbonatos para las profundidades aquí estudiadas (Hurtado et al., 2006a, b, Gimenez et al., 2005). Si bien en el trabajo aquí presentado no se llevaron a cabo estudios del contenido de carbonatos en los suelos, se puede decir que durante la realización del pre-tratamiento requerido para el análisis textural se observó, en forma cualitativa, que los suelos de Villa Argüello y el Parque Pereyra Iraola podrían contener carbonatos. Los valores de pH determinados en estos suelos son compatibles con

esta hipótesis. Por lo tanto, la variabilidad de la actividad del ^{226}Ra en los suelos de Villa Argüello y del Parque Pereyra Iraola podría ser atribuida a que el radionucleido se encuentra formando complejos solubles, por lo que su movilidad en la columna de suelo diferiría de la movilidad que posee en los suelos con menor contenido o ausencia de carbonatos.

Al igual que en el caso del ^{232}Th , se realizó un test ANOVA para comparar las actividades medias en las columnas de suelo, excluyendo en este caso los suelos de las zonas de Villa Argüello y Parque Pereyra. Nuevamente, como las actividades fueron determinadas para distintos suelos se puede considerar que los valores son independientes y se estableció, utilizando el test de Bartlett con un 95 % de confianza, que las varianzas de los errores son homogéneas (ver también el gráfico de diagnóstico, Figura 5.10). Así, fue posible realizar el test ANOVA para las medias de los cuatro suelos restantes y se encontró que no todas las actividades medias eran iguales. Realizando el test de Tukey para compararlas, se obtuvo con el mismo grado de significancia que sólo las medias determinadas para la región de Los Hornos y Arroyo Correa son iguales. Por lo tanto tampoco, al igual que lo sucedido para el ^{232}Th , se pudo establecerse un valor medio de actividad de ^{226}Ra en los suelos de la región de La Plata.

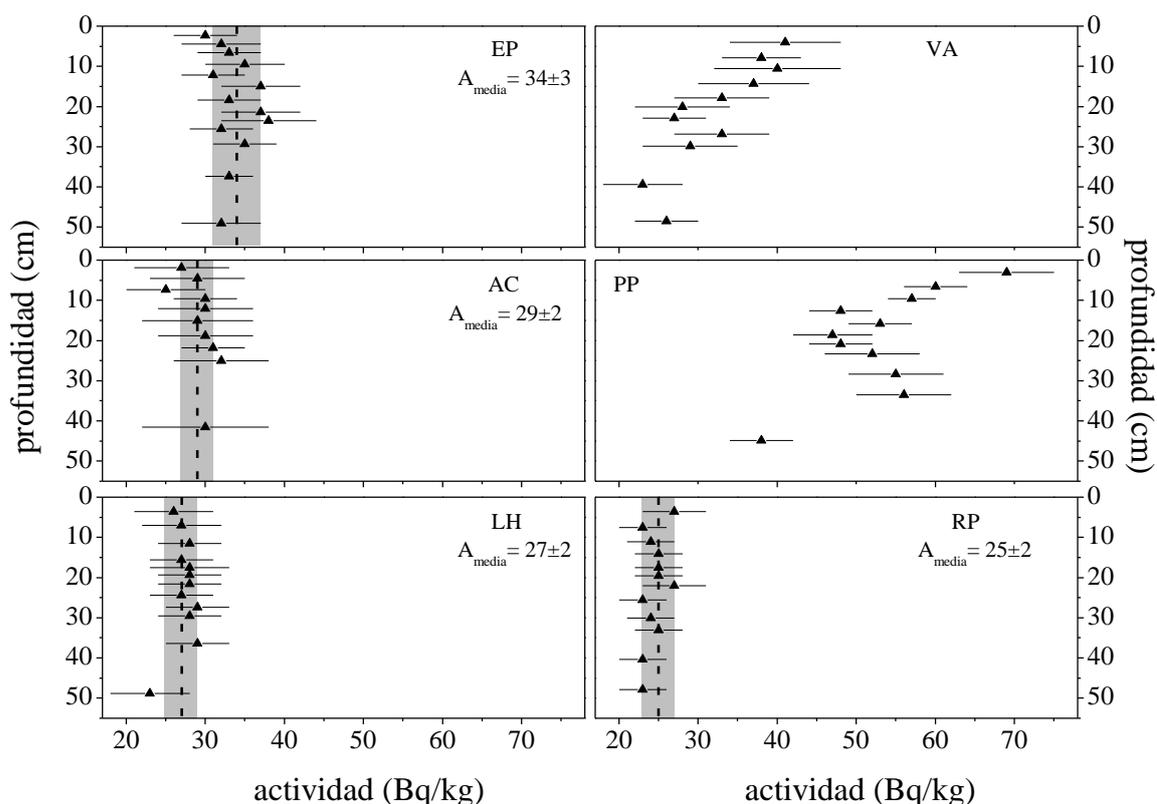


Figura 5.9: Perfiles de actividad del ^{226}Ra , junto con los valores medios de actividad determinados (Bq/kg) para los suelos de la zona de influencia continental y el de la zona de Radio Provincia.

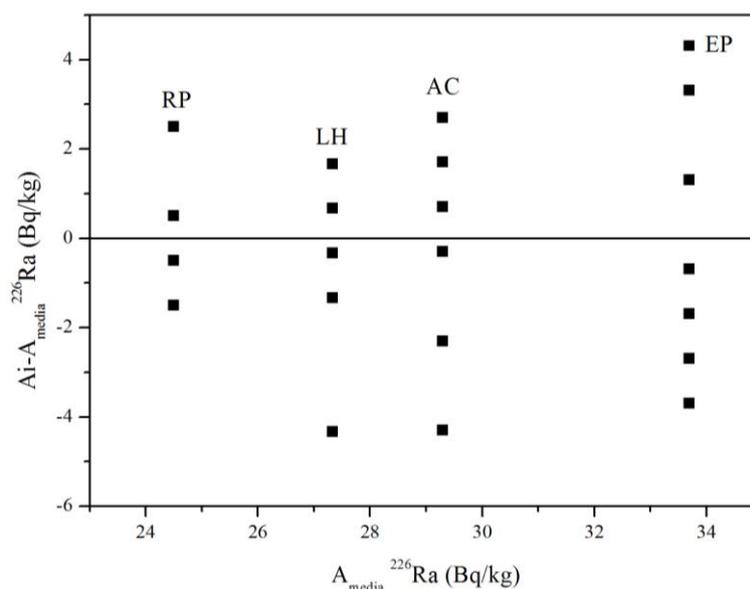


Figura 5.10: Gráfico de diagnóstico para el análisis de las varianzas de los errores de las actividades del ^{226}Ra .

5.2.2.2 Relación con los minerales del suelo

Para analizar la relación entre la actividad del ^{226}Ra y los minerales presentes en el suelo se calcularon los coeficientes de correlación entre los porcentajes de las fases minerales determinados por DRX y las actividades medidas. Como puede verse en la Tabla 5.4 sólo existe una correlación significativa con el contenido de caolinita. Al igual que en el caso del Th, para determinar cuál es el tipo de relación se requieren de estudios adicionales. Por su parte, se puede afirmar que no existe correlación entre la actividad del ^{226}Ra y el contenido de illita y esmectitas.

Tabla 5.4: Coeficientes de correlación de Pearson entre la actividad del ^{226}Ra y los % de illita, esmectitas y caolinita

	r	NS	D
I	0,367	0,134	ns
Sm	0,182	0,469	ns
Ka	0,596	0,009	s

Siguiendo con el análisis, se determinaron los coeficientes de correlación de Pearson entre la actividad del ^{226}Ra y las fracciones relativas de las fases de Fe. Los resultados se muestran en la Tabla 5.5. Al igual que para el Th, la correlación entre la actividad y las fracciones relativas de magnetita y hematita es significativa y negativa. Nuevamente, esto podría indicar que los radionucleidos pertenecientes a la cadena del ^{238}U no se relacionan con estos óxidos de Fe. En lo referente a la correlación positiva y significativa con el sitio de $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$ la misma podría estar asociada a la relación significativa de la actividad con las esmectitas. Al igual que para el Th, no se observa una relación significativa con los sitios de $\text{Fe}^{3+}(\text{II})$. Esto podría indicar que los radionucleidos de esta cadena no se estarían alojando en este tipo de sitios en los minerales.

Tabla 5.5: Coeficientes de correlación de Pearson entre la actividad de los radionucleidos naturales y las fases de Fe. Se incluyen los niveles de significancia (NS) y la decisión (D) si la correlación es significativa (s) o no (ns).

	r	NS	D
α -Fe ₂ O ₃	-0,480	0,002	s
Fe ₃ O ₄	-0,598	0,031	s
Fe ³⁺ (I)	0,378	0,015	s
Fe ³⁺ (II)	0,037	0,818	ns
Fe ³⁺ total	0,373	0,016	s
Fe ²⁺	0,092	0,567	ns

5.2.2.3 Actividad en muestras superficiales de suelo

La Figura 5.11 presenta las actividades determinadas en las muestras de suelo superficial de las regiones de La Plata y Ezeiza (cuadrados abiertos). Además, se incluyen las actividades determinadas en superficie para los suelos de Villa Argüello y Parque Pereyra y las actividades medias determinadas en las columnas de suelo para las regiones de El Peligro, Arroyo Correa, Los Hornos y Radio Provincia. En este caso el intervalo de actividades es de 21 Bq/kg a 69 Bq/kg.

Como puede verse, todos los valores están en el mismo orden de magnitud, con excepción de las actividades encontradas para el Parque Pereyra Iraola y la muestra superficial S5, localizada en las cercanías de dicha reserva. Exceptuando estas dos determinaciones, las actividades son cercanas al valor medio mundial publicado por UNSCEAR (UNSCEAR, 2008) y a la actividad determinada en Rio Grande do Norte, Brasil (Malanca et al., 1996). Además, están acorde con las actividades publicadas para San José, Uruguay, siendo mayores que las publicadas para el resto de los departamentos uruguayos (Odino Moure, 2010). Los suelos con actividad relativamente alta presentan actividades similares a las determinadas en suelos de San Luis, Argentina (Jury Ayub et al., 2008). Las actividades determinadas para la región de Ezeiza resultaron similares a las obtenidas para la región de La Plata.

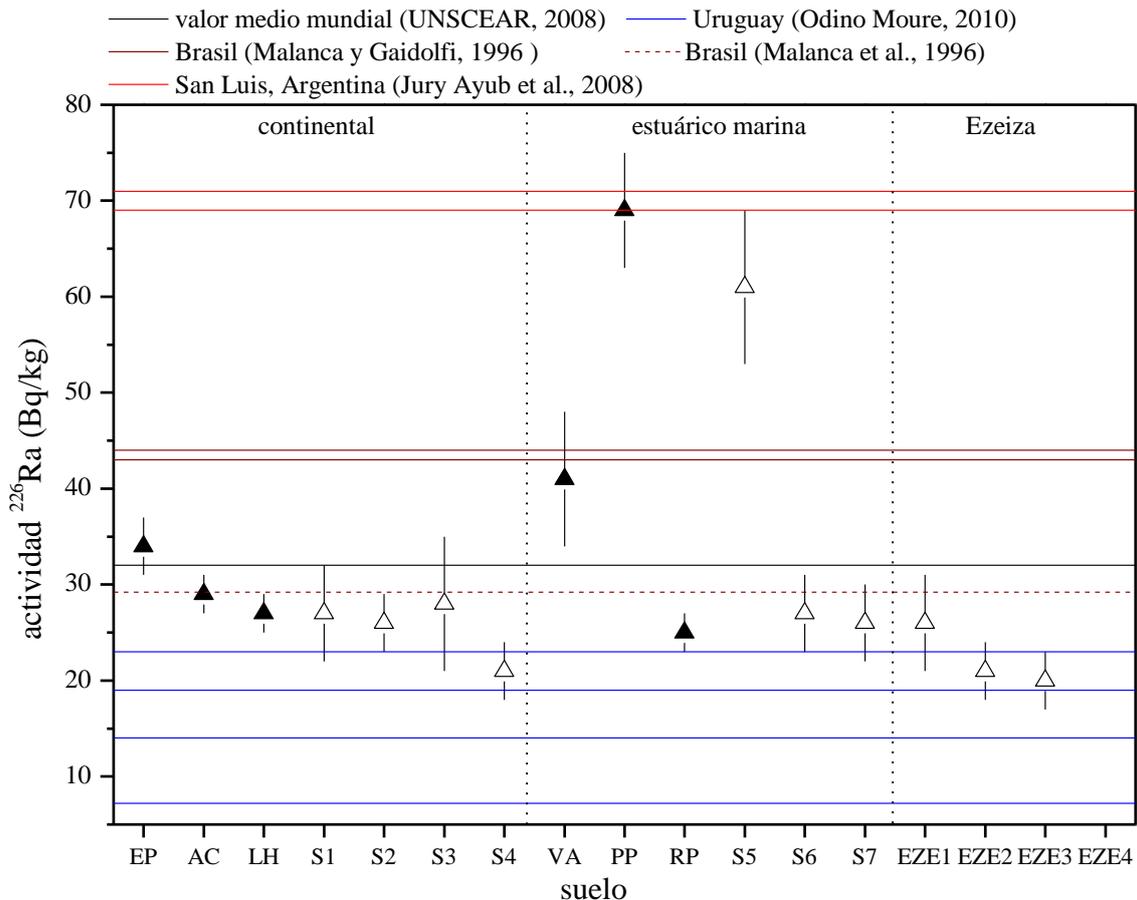


Figura 5.11: Actividades medias de ^{226}Ra en los suelos. Los valores presentados para Villa Argüello y Parque Pereyra corresponden a la actividad determinada en superficie. Los cuadrados abiertos presentan la actividad determinada en muestras de suelo superficial. Se incluyen además los valores determinados en suelos de San Luis (Argentina), Brasil, Uruguay y el valor medio mundial.

5.2.3 Actividad del ^{40}K

5.2.3.1 Perfiles de actividad

La Figura 5.12 muestra los perfiles de actividad del ^{40}K . Este radionucleido es el que mayor actividad presenta, siendo un orden de magnitud mayor que las encontradas para el ^{226}Ra y el ^{232}Th . La tendencia observada en los suelos pertenecientes a la zona de influencia continental y en Radio Provincia es que la actividad aumenta con la profundidad. Por su parte, para la región de Villa Argüello la actividad tiende a disminuir a partir de los 30 cm de profundidad, mientras que para la zona del Parque Pereyra Iraola la actividad se mantiene constante. Además, para estos dos suelos, la actividad en las capas más superficiales es mayor que la determinada para los suelos de la zona continental y Radio Provincia.

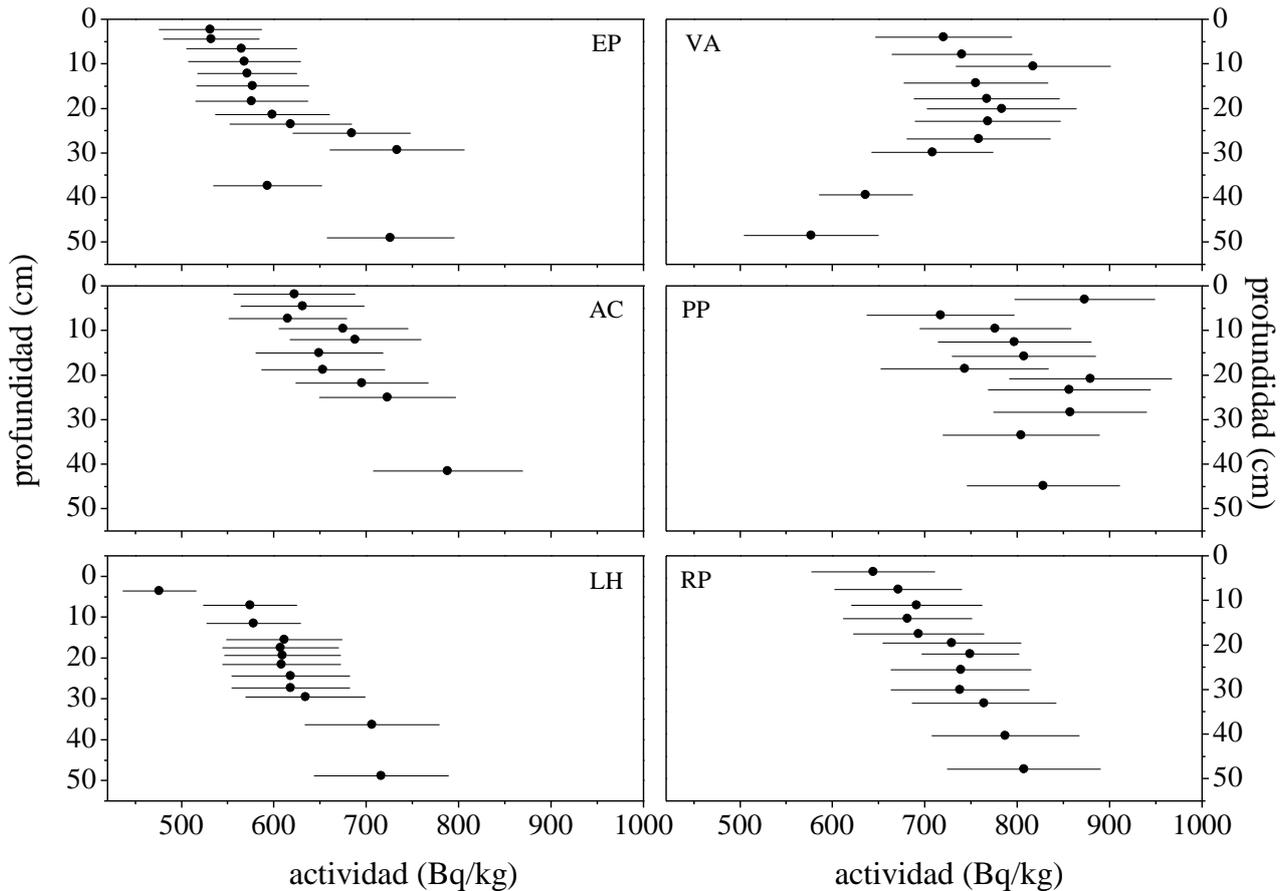


Figura 5.12: Perfiles de actividad del ^{40}K .

El aumento de la actividad con la profundidad podría estar asociado a dos procesos diferentes. Por un lado, es conocido que el K es un nutriente esencial para las plantas, así, podría esperarse que en la región donde se encuentran las raíces de las plantas (capas más superficiales) haya una disminución de la actividad del ^{40}K respecto de las capas más profundas. Por otra parte, el ^{40}K puede quedar ligado a las arcillas, cuya concentración en el suelo aumenta con la profundidad (ver Tabla 4.9). Este tema será discutido en la siguiente sección.

5.2.3.2 Relación con los minerales del suelo

Para analizar la relación de la actividad del ^{40}K con los minerales presentes en los suelos de la región de La Plata, se calcularon los coeficientes de correlación de Pearson entre los porcentajes de las fases minerales y la actividad del radionucleido en las muestras crudas. Los resultados son presentados en la Tabla 5.6. Como puede verse de los valores de la Tabla, no se observa una correlación significativa entre la actividad del ^{40}K y el porcentaje de illita, pero si existe con las esmectitas.

Tabla 5.6: Coeficientes de correlación de Pearson, r, entre la actividad del ^{40}K y los porcentajes de las fases minerales. Se incluyen el nivel de significancia, ND y la decisión, D, sobre la significancia de la relación.

	r	NS	D
I	0,100	0,692	ns
Sm	0,523	0,025	s
K	0,346	0,159	ns

En la Figura 5.13 a) se presenta la actividad del ^{40}K en las muestras crudas como función del porcentaje de esmectita. Como puede verse, aún cuando la correlación resultó significativa, la tendencia no es clara.

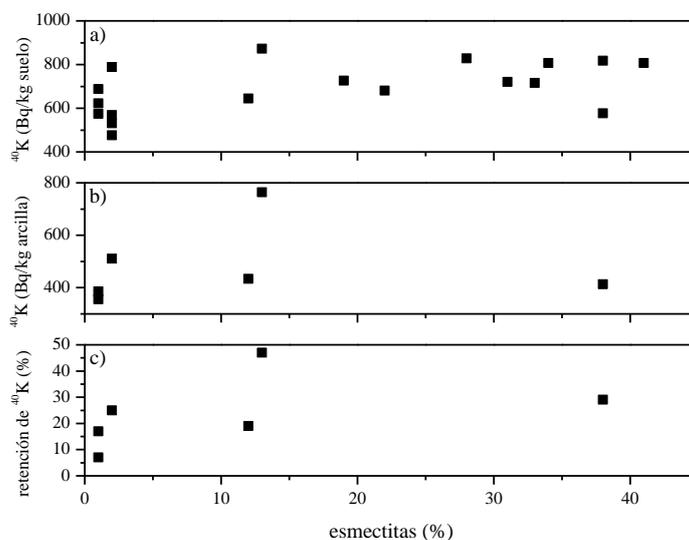


Figura 5.13: actividad del ^{40}K en las muestras crudas y en la fracción de arcilla, junto con el porcentaje de retención del ^{40}K en la fracción de arcilla, como función del porcentaje de esmectitas.

Por su parte, se analizaron las actividades del ^{40}K en la fracción de arcilla de muestras seleccionadas de cada perfil, los resultados se presentan en la Tabla 5.7, junto con la actividad del ^{40}K en la muestra cruda y el porcentaje de retención del ^{40}K en la fracción de arcilla. Este porcentaje fue determinado según:

$$\% \text{ ret} = \frac{A(\text{arcilla}) \times \% \text{ arcilla}}{A(\text{cruda})} \quad (5.1)$$

donde $A(\text{cruda})$ y $A(\text{arcilla})$ son las actividades determinadas en la muestra cruda y la fracción de arcilla, respectivamente, y $\% \text{ arcilla}$ el porcentaje de la fracción de arcilla.

Tabla 5.7: Actividad del ^{40}K en muestras crudas ($^{40}\text{K}_{\text{cr}}$) y en la fracción de arcilla ($^{40}\text{K}_{\text{ar}}$), indicando el porcentaje de ^{40}K retenido en la arcilla (% ret).

Suelo	$^{40}\text{K}_{\text{cr}}$ (Bq/kg)	$^{40}\text{K}_{\text{ar}}$ (Bq/kg)	% ret
EP-4	568±61	511±91	25±7
AC-5	688±71	386±32	7±2
LH-2	574±51	356±57	17±4
VA-3	817±84	413±34	29±6
PP-1	873±76	764±68	47±8
RP-1	644±67	434±42	19±4

Como puede observarse de la Tabla 5.7, el valor más alto del porcentaje de retención se determinó para la zona del Parque Pereyra, seguida por el suelo de Villa Argüello, indicando que estos suelos presentarían una mayor retención de ^{40}K .

La Figura 5.13 b) y la Figura 5.13 c) representan la actividad del ^{40}K en la fracción de arcilla y el grado de retención del ^{40}K por dicha fracción como función del porcentaje de esmectita. Al igual que para el caso de la actividad de ^{40}K en las muestras crudas, no se observa una relación clara ni entre la actividad del radionucleido, ni entre el grado de retención con la concentración de esmectitas. Esto indicaría que el ^{40}K no se está alojando preferentemente en este mineral.

Al considerar las actividades de ^{40}K en las muestras crudas de suelo y los porcentajes de illita (ver Figura 5.14 a)) no se observa ninguna tendencia en particular, como también fuera indicado por el coeficiente de correlación de Pearson. Por el contrario, cuando se compara la actividad del ^{40}K en arcilla con el porcentaje de illita (ver Figura 5.14 b)), a mayor porcentaje de illita, mayor es la actividad del ^{40}K en estas muestras. Al observar la Figura 5.14 c), parecería verse una tendencia semejante, mayor concentración de illita, mayor grado de retención del radionucleido. En resumen, si bien del análisis de las muestras crudas no se puede afirmar una retención del ^{40}K en illita, los estudios llevados a cabo en las arcillas estarían indicando que el ^{40}K sí sería retenido en la illita.

Realizando un análisis similar al llevado a cabo para la esmectita y la illita ahora para el caso de la caolinita, no se observa relación entre la actividad del ^{40}K en las muestras crudas con el porcentaje de caolinita. Asimismo, no se observa relación de la actividad de este radionucleido en la fracción de arcilla con el contenido de caolinita, ni tampoco del grado de retención del potasio con dicho mineral (Figura 5.15). Por lo tanto, parecería que el ^{40}K no se aloja en este mineral.

Para obtener resultados más concluyentes deberían ampliarse el número de muestras estudiadas y completar con otros estudios.

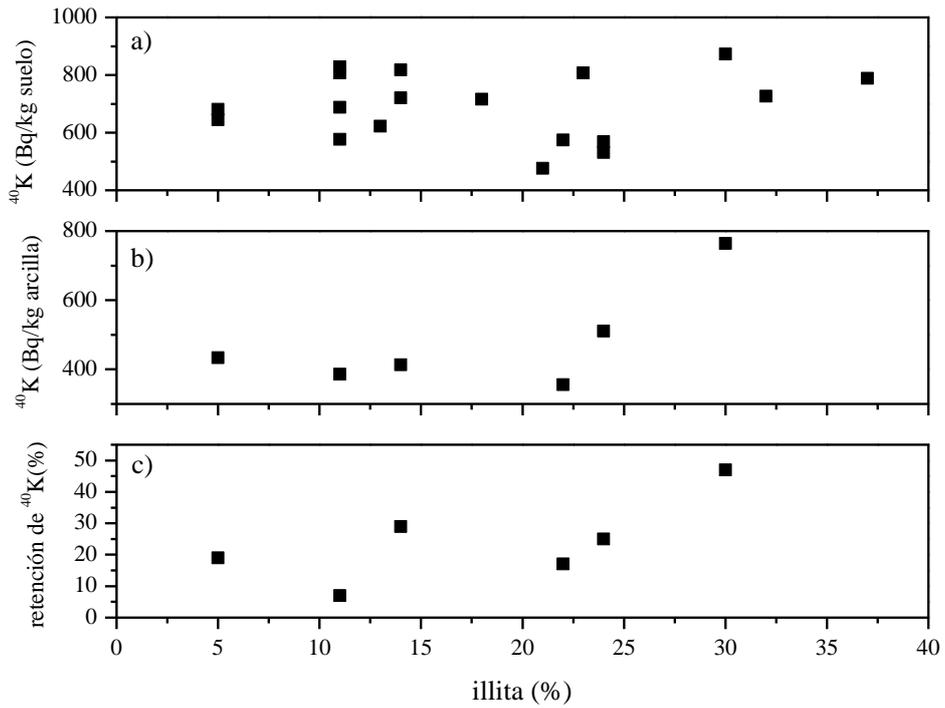


Figura 5.14: Actividad del ^{40}K , a) en la muestra cruda de suelo y b) en la fracción de arcilla, como función del porcentaje de illita en el suelo. En c) se presenta el porcentaje de retención del ^{40}K en la fracción de arcilla.

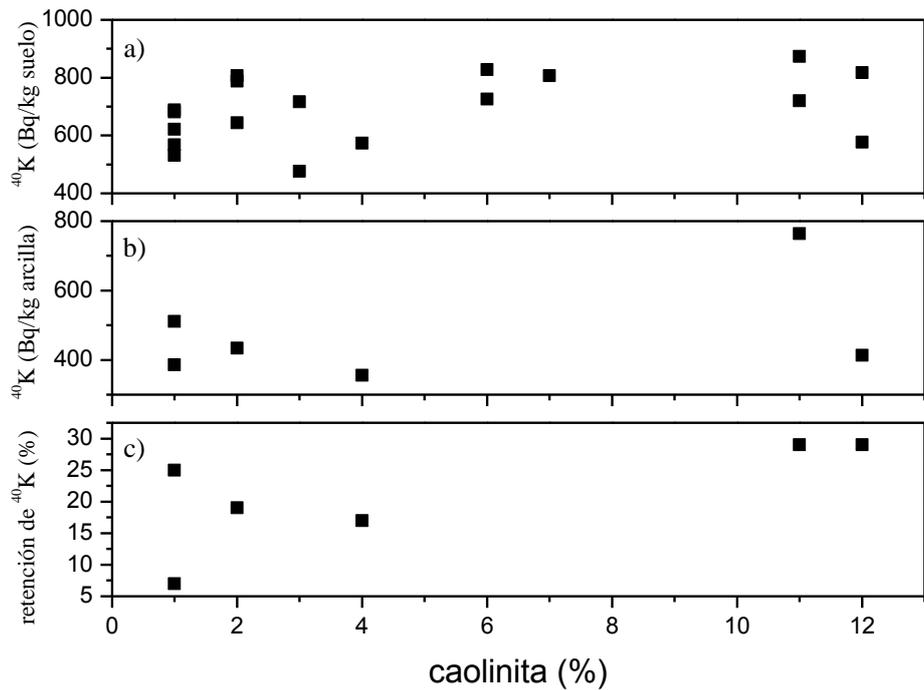


Figura 5.15: Actividad del ^{40}K , a) en la muestra cruda de suelo y b) en la fracción de arcilla, como función del porcentaje de caolinita en el suelo. En c) se presenta el porcentaje de retención del ^{40}K en la fracción de arcilla.

Para analizar la relación de la actividad del ^{40}K con las fases de Fe presentes en el suelo se calcularon los coeficientes de correlación de Pearson entre la actividad del radionucleido y las fracciones relativas de las fases de Fe. Los resultados se muestran en la Tabla 5.8.

Tabla 5.8: Coeficientes de correlación de Pearson entre la actividad del ^{40}K y las fracciones relativas de las fases de Fe. Se incluyen los niveles de significancia (NS) y la decisión (D) si la correlación es significativa (s) o no (ns).

	r	NS	D
$\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$	-0,715	$1,5 \cdot 10^{-7}$	s
Fe_3O_4	-0,594	0,032	s
$\text{Fe}^{3+}(\text{I})$	0,682	$9 \cdot 10^{-7}$	s
$\text{Fe}^{3+}(\text{II})$	-0,194	0,23	ns
$\text{Fe}^{3+}\text{total}$	0,617	$1,8 \cdot 10^{-5}$	s
Fe^{2+}	0,228	0,15	ns

Al igual que para el Th y el Ra, la actividad del ^{40}K se correlaciona negativamente con las fracciones relativas de magnetita y hematita. Nuevamente, este hecho se podría atribuir a que estos minerales no presentan intercapas donde el ^{40}K pueda alojarse. La relación entre la fase de $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$ y la actividad del ^{40}K es positiva y significativa. De hecho, si se observan los perfiles de actividad del ^{40}K y los de fracción relativa de $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$ obtenidos mediante espectroscopía Mössbauer (Figura 5.16), se observa una tendencia similar en los comportamientos de ambas variables. Este hecho está en acuerdo con las tendencias observadas con el porcentaje de arcillas.

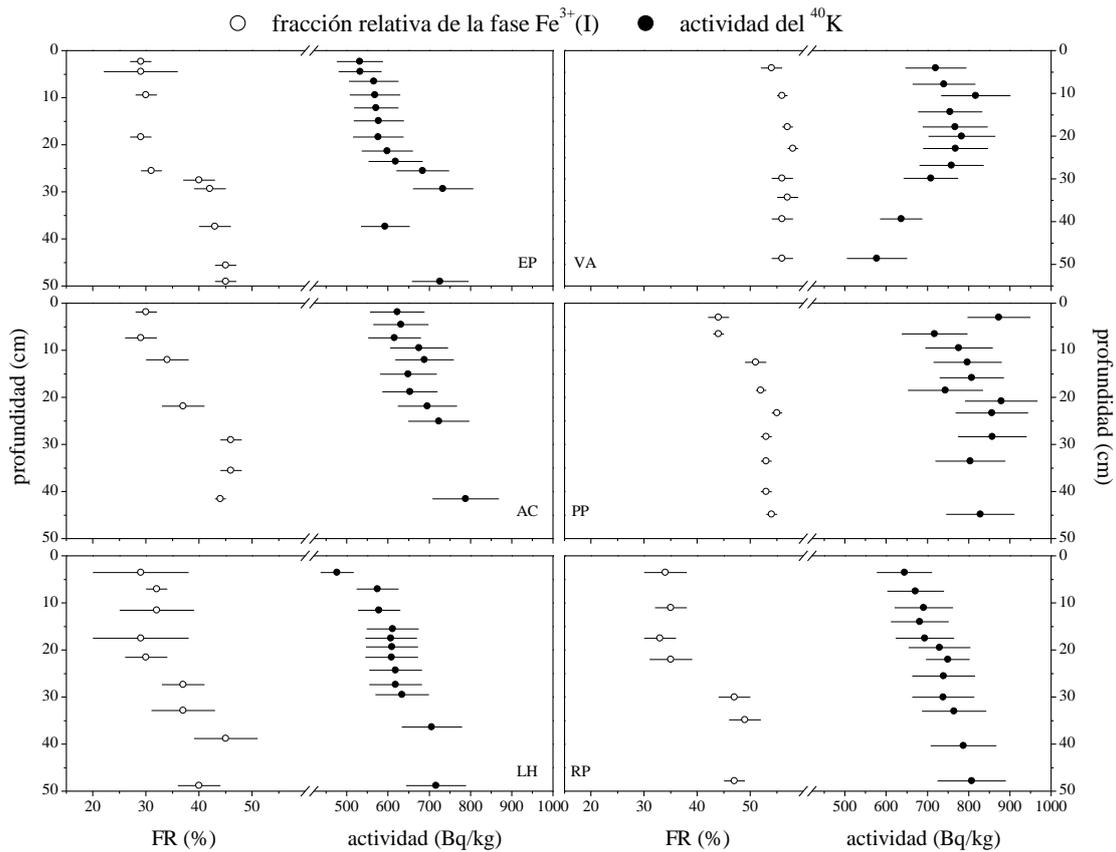


Figura 5.16: Perfiles de la fracción relativa de la fase de $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$ y de la actividad del ^{40}K .

5.2.3.3 Actividad del ^{40}K en muestras de suelo superficial

En la Figura 5.17 se presentan las actividades del ^{40}K de las muestras tomadas en superficie y de las muestras superficiales de los perfiles, incluyendo el valor medio mundial (UNSCEAR, 2008) y actividades publicadas para suelos superficiales la provincia de San Luis, Argentina (Jury Ayub et al, 2008), Brasil (Malanca et al., 1996, Malanca y Gaidolfi, 1996, Araujo dos Santos Junior et al., 2005) y Uruguay (Odino Moure, 2010). Las actividades obtenidas para los suelos de la región de La Plata son similares entre sí, con excepción de las determinadas para el Parque Pereyra Iraola y la muestra S5, donde se establecieron los mayores valores. El intervalo determinado de actividades de ^{40}K para los suelos superficiales es de 476 Bq/kg a 873 Bq/kg.

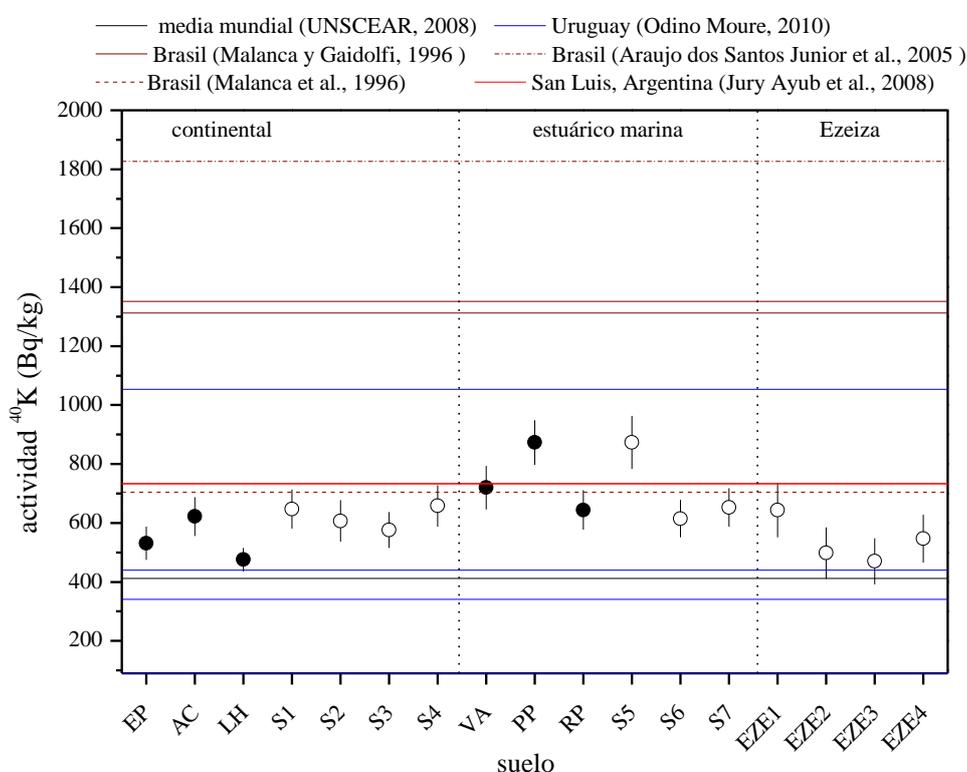


Figura 5.17: Actividad del ^{40}K en superficie. Los círculos cerrados y abiertos corresponden a las muestras superficiales de los perfiles y las tomadas en superficie, respectivamente. En líneas se representan las actividades determinadas para suelos de San Luis (Argentina), Brasil, Uruguay y el valor medio mundial.

Al igual que para los demás radionucleidos, las actividades de la zona de Ezeiza y La Plata son similares. Comparando con los suelos de San Luis, la mayoría de las actividades determinadas en la región de La Plata son menores, con excepción de los suelos de la región del Parque Pereyra Iraola. Todas las actividades determinadas en la región de La Plata están por encima del valor medio publicado por UNSCEAR y en torno al valor determinado en la región de Rio Grande do Norte, Brasil. Además, se encuentran por debajo de los valores determinados para la región de Sertao, Brasil y en el intervalo de actividades publicadas para los suelos de Uruguay.

5.2.4 Correlación entre la actividad de los radionucleidos naturales

A fin de establecer si existe una relación entre las actividades de los radionucleidos naturales presentes en los suelos se calcularon los coeficientes de correlación de Pearson (Walpole et al., 1999) entre sus actividades (ver Tabla 5.9). Se estableció, con un 95 % de confianza, que existe una correlación significativa entre las actividades de Ra y K y entre las actividades del Th y K, con coeficientes de correlación similares. Para inferir acerca de la relación entre los radionucleidos involucrados, se requieren de estudios más específicos. Para el caso del Ra y Th no se encontró una relación significativa entre sus actividades. Esto indica que, para los suelos de la región de La Plata, no puede esperarse una relación entre la actividad de estos radionucleidos. Una causa podría ser que el Ra podría estar formando complejos solubles en los suelos, mientras que el Th forma parte de sales insolubles, por lo que la movilidad de estos radionucleidos en el suelo sería diferente.

Utilizando los datos de actividad en suelos de la región de La Plata aquí determinados, los presentados en la Tabla 1.6 y aquellos publicados para la provincia de San Lu s (Jury Ayub et al., 2008), Uruguay (Odino Moure, 2010) y Brasil (Malacanca et al., 1996, Malanca y Gaidolfi, 1996) se calcularon nuevamente los coeficientes de correlaci n de Pearson (ver global en Tabla 5.9). El gr fico de las actividades de cada uno de los radionucleidos como funci n de la actividad de los dos restantes se muestra en la Figura 5.18. Como puede verse, la correlaci n entre la actividad de los radionucleidos sigue siendo positiva. Los coeficientes determinados entre la actividad del ^{40}K y los otros dos radionucleidos no cambian significativamente en comparaci n a aquellos determinados exclusivamente para suelos de La Plata. Sin embargo, el calculado entre las actividades de ^{226}Ra y ^{232}Th si lo hace, aumenta y se hace significativo. Debido a que los valores de actividad tomados de la literatura para el c lculo del coeficiente de correlaci n se corresponden a valores medios para cada pa s o regi n, y no se tiene datos de las caracter sticas de los suelos, no es posible sacar mayores conclusiones.

Tabla 5.9: Coeficientes de correlaci n de Pearson calculados entre las actividades de los radionucleidos naturales, utilizando: solamente los de La Plata o los de La Plata, Am rica del Sur (excepto Brasil) y los valores medios de UNSCEAR (global). Entre par ntesis se indica si la correlaci n es significativa (s) o no lo es (ns).

La Plata			Global				
	^{232}Th	^{226}Ra	^{40}K		^{232}Th	^{226}Ra	^{40}K
^{232}Th	1	0,310 (ns)	0,538 (s)	^{232}Th	1	0,515 (s)	0,578 (s)
^{226}Ra		1	0,533 (s)	^{226}Ra		1	0,477 (s)
^{40}K			1	^{40}K			1

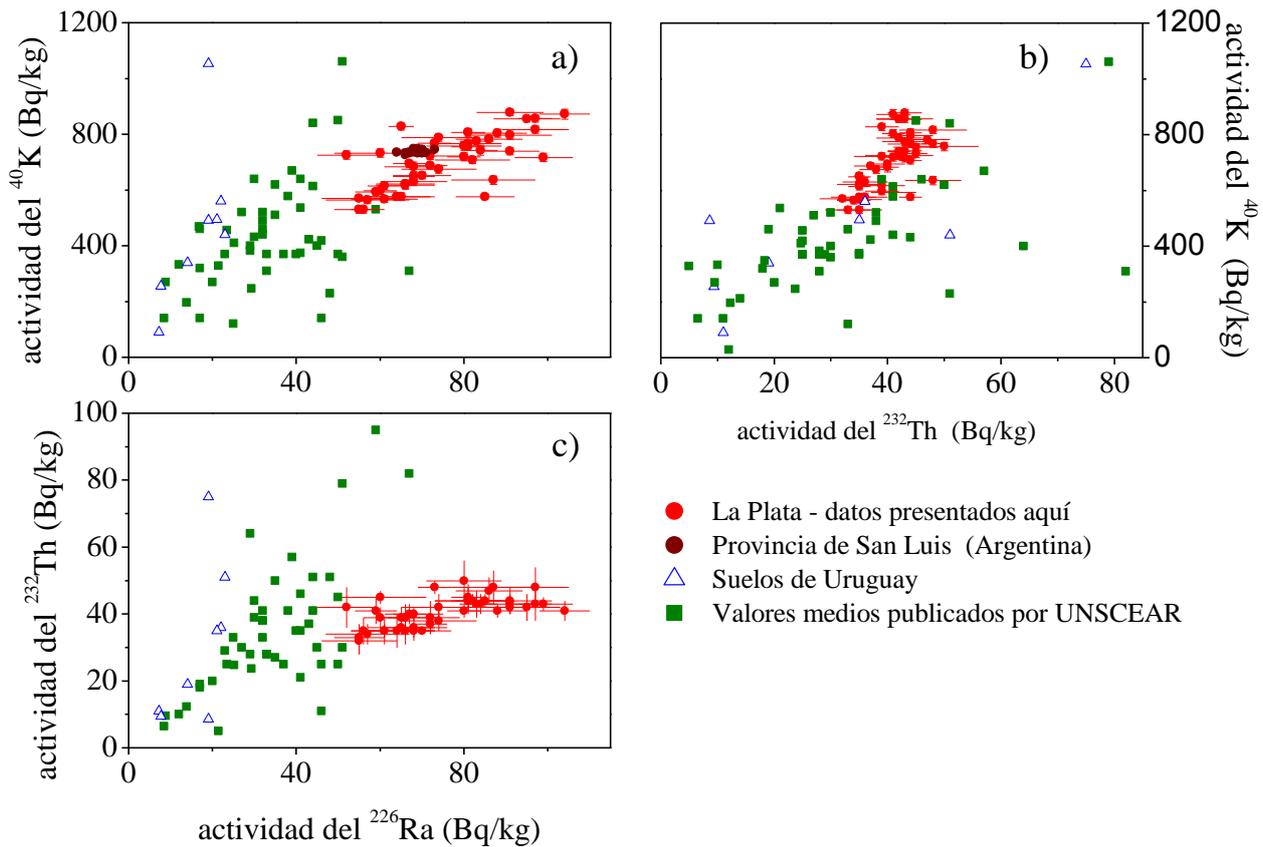


Figura 5.18: Actividad de los radionucleidos naturales: ^{40}K vs ^{226}Ra , ^{40}K vs ^{232}Th y ^{232}Th vs ^{226}Ra .

5.2.5 Dosis anual equivalente: contribución de los radionucleidos naturales presentes en suelos

Como fuera mencionado en el Capítulo 1, a partir de la actividad de los radionucleidos presentes en suelos se puede calcular la tasa de dosis absorbida, D , y la dosis efectiva anual equivalente, DAE_s . La Tabla 5.10 muestra los valores calculados a partir de la actividad en suelos para la región de La Plata y la de Ezeiza. La Figura 5.19 y la Figura 5.20 muestran los valores calculados para D y DAE_s , respectivamente, incluyendo los valores calculados para Brasil, Uruguay y el valor medio mundial publicado por UNSCEAR (UNSCEAR, 2008). Para el caso de la región de Rio Grande do Norte, Brasil, la línea vertical hace referencia al intervalo de dosis calculados según los datos de actividad presentados en la Tabla 1.7. Para el caso de Uruguay, los datos de Colonia se presentan en orden cronológico, desde 2004 a 2007 y 2009.

Tabla 5.10: Contribución a la tasa de dosis absorbida y dosis efectiva anual equivalente debido al decaimiento de los radionucleidos naturales presentes en suelos.

Suelo	$D(nGy / hs)$	$DAE_s (mSv)$		
		infantes	niños	adultos
EP	59±8	0,094±0,008	0,081±0,007	0,071±0,006
AC	61±10	0,098±0,009	0,085±0,008	0,075±0,007
LH	56±8	0,090±0,008	0,078±0,007	0,069±0,006
VA	74±10	0,118±0,009	0,102±0,008	0,090±0,007
PP	87±9	0,139±0,009	0,120±0,007	0,106±0,006
RP	57±7	0,092±0,008	0,080±0,006	0,070±0,005
S1	64±9	0,101±0,008	0,088±0,007	0,078±0,006
S2	60±7	0,096±0,007	0,083±0,006	0,073±0,006
S3	58±10	0,093±0,009	0,081±0,008	0,071±0,007
S4	55±9	0,089±0,009	0,077±0,008	0,068±0,007
S5	91±12	0,15±0,01	0,13±0,01	0,110±0,009
S6	60±7	0,097±0,007	0,084±0,006	0,074±0,005
S7	58±7	0,093±0,007	0,081±0,006	0,071±0,005
EZE1	60±18	0,10±0,02	0,08±0,02	0,07±0,02
EZE2	47±16	0,07±0,02	0,07±0,02	0,06±0,02
EZE3	43±14	0,07±0,02	0,06±0,02	0,05±0,01
EZE4	50±10	0,08±0,01	0,070±0,008	0,062±0,007

Las tasas de dosis absorbida originada por el decaimiento de los radionucleidos naturales presentes en los suelos de La región de La Plata se encuentran próximas a 60 nGy/h, con excepción de los suelos de VA, PP y S5, donde las tasas de dosis alcanzan valores mayores a 70 nGy/h. Dado que las magnitudes son calculadas a partir de las actividades medidas en suelos, era de esperar que las tasas de dosis fueran mayores para esas regiones. Los valores obtenidos para la región de Ezeiza son similares a los determinados para la región de La Plata. Las tasas de dosis absorbida calculadas para las regiones estudiadas son cercanas al valor medio mundial y a los valores obtenidos para Colonia (2004-2005) y Salto, Uruguay. En Brasil, las tasas de dosis absorbidas toman valores muy por debajo y muy por encima de las dosis determinadas para la región de La Plata (consecuente con la alta variabilidad de la actividad en suelos de ese país).

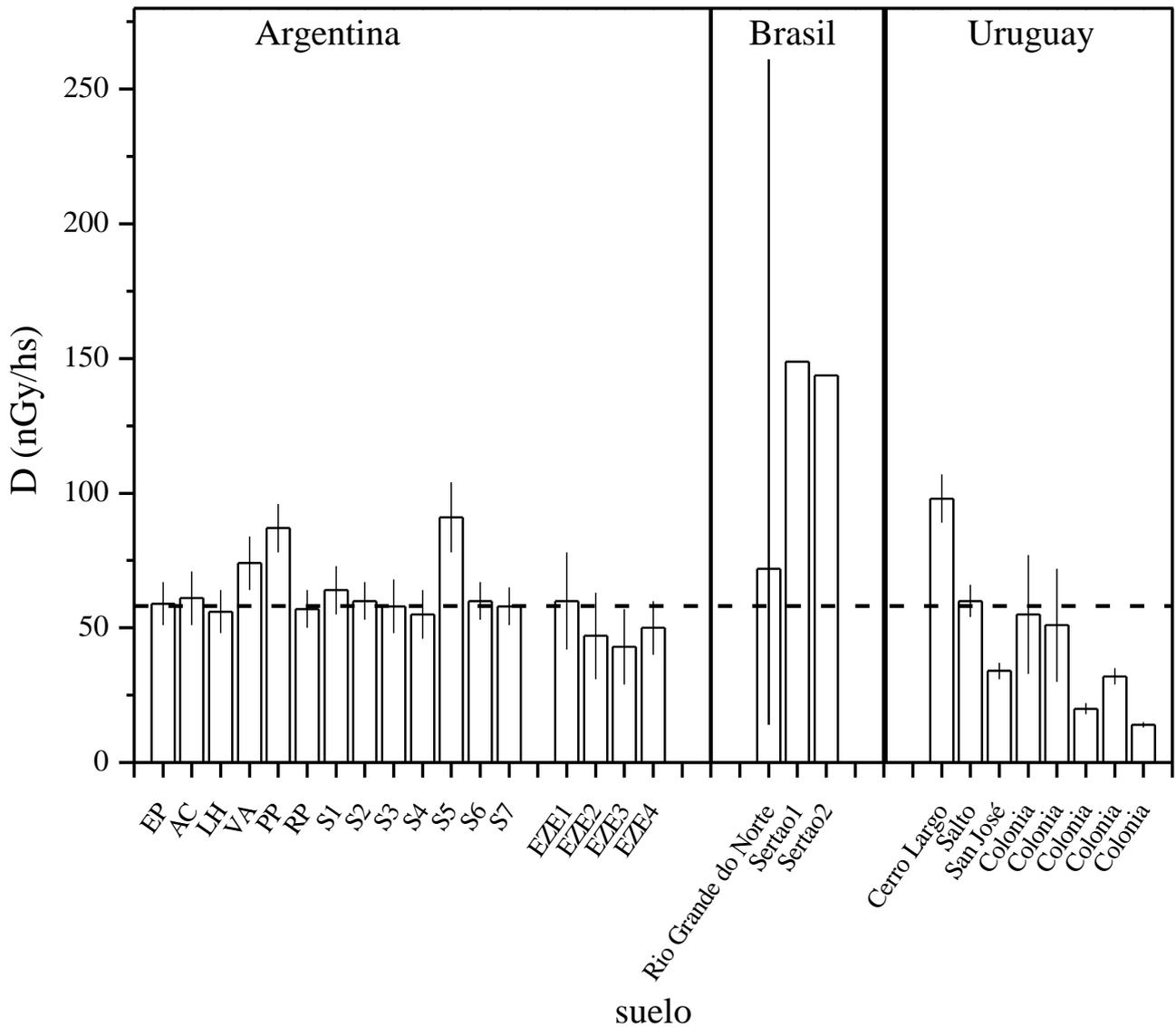


Figura 5.19: Tasa de dosis absorbida para la región de La Plata y Ezeiza calculada a partir de los datos de actividad de los radionucleidos naturales presentes en suelos. Se incluyen además los valores determinados para los suelos de Brasil (Malanca et al., 1996, Malanca y Gaidolfi, 1996) y Uruguay (Odino Moure, 2010) y el valor medio mundial (UNSCEAR, 2008).

Dado que los diferentes grupos generacionales presentan distinta radiosensibilidad, la dosis efectiva anual equivalente se determinó para infantes, niños y adultos separadamente (Figura 5.20). Los infantes son los más radiosensibles por lo que los valores obtenidos para este grupo son mayores que para los otros dos grupos generacionales. Al igual que la tasas de dosis absorbida, la dosis efectiva anual equivalente es similar para todos los suelos de la región de La Plata, con excepción de Parque Pereyra, Villa Argüello y S5, y comparables con el valor medio mundial para el caso de adultos. Si se evalúan las magnitudes determinadas para las regiones de La Plata y Ezeiza, no se observan diferencias significativas. Las comparaciones con las dosis efectivas anuales equivalentes determinadas para Uruguay y Brasil son análogas a las hechas para la tasa de dosis absorbida.

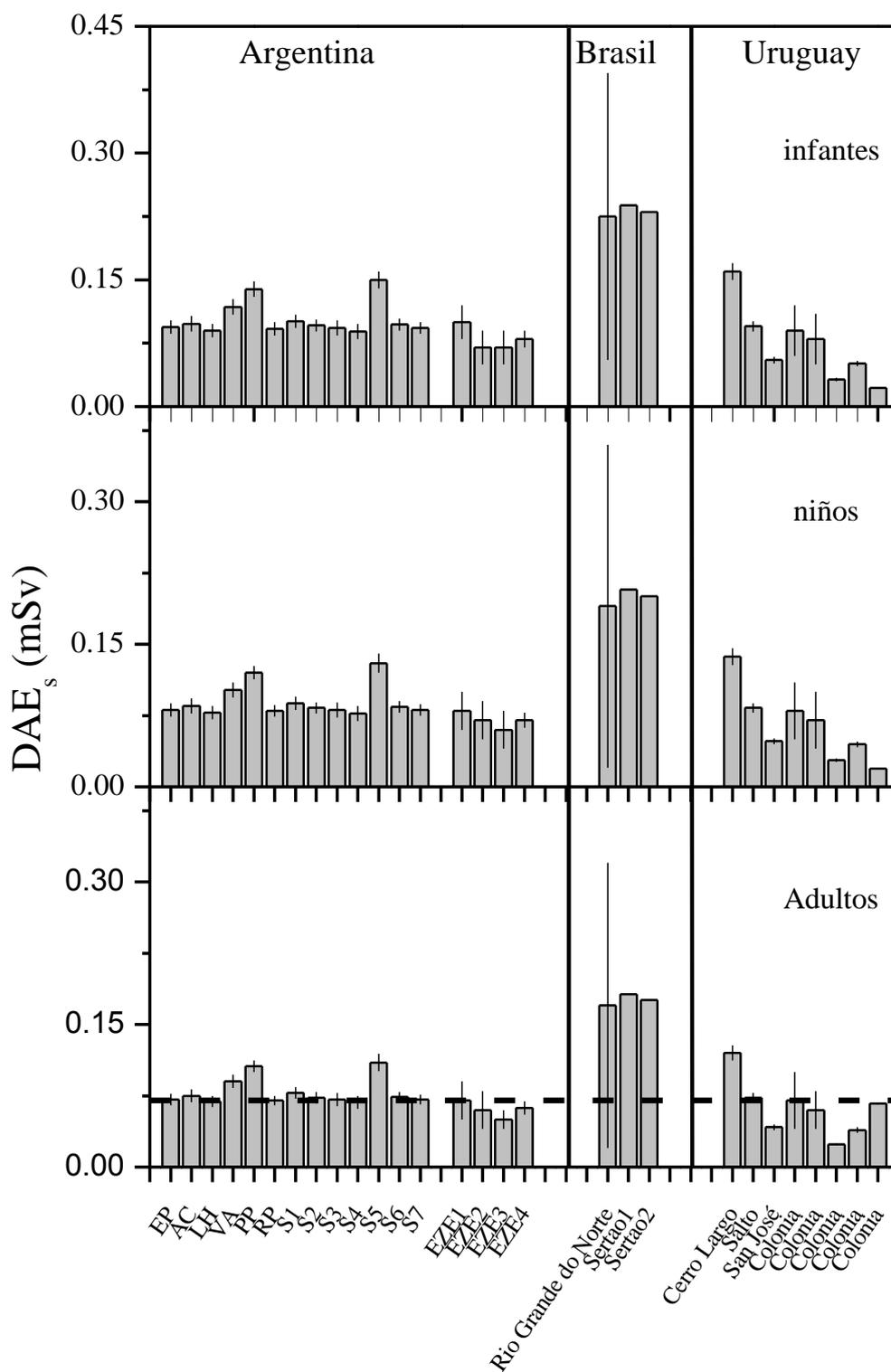


Figura 5.20: Dosis efectiva anual equivalente para los suelos de la región de La Plata y Ezeiza. Se incluyen también los valores para suelos de Brasil y Uruguay, como el valor medio mundial publicado por la UNSCEAR.

La Tabla 5.11 presenta la dosis anual equivalente efectiva estimada a partir de los datos obtenidos en el campo mediante en detector Geiger Müller (DAE_{ext}), considerando que las personas pasan en el espacio exterior un 20 % del tiempo. Las magnitudes determinadas son menores al valor medio mundial de 0,45 mSv/a y no se observan diferencias significativas entre los valores determinados para los distintos suelos, incluso entre aquellos donde los niveles de radioactividad natural resultaron mayores. En la Tabla 5.11 se incluye el cociente entre la contribución terrestre y la dosis determinada *in situ*, el cual varía entre 0,295 y 0,426. Este resultado indica que el decaimiento de los radionucleidos naturales presentes en los suelos está contribuyendo con valores de entre el 30 % y el 43 % a la dosis efectiva anual equivalente externa.

Tabla 5.11: Dosis anual equivalente externa determinada a partir de los datos de dosis medidos in situ. Se incluye el cociente DAE_s / DAE_{ext} .

Lugar	DAE_{ext} (mSv/a)			DAE_s / DAE_{ext}
	mínimo	máximo	medio	
El Peligro	0,156	0,366	0,219	0,324
Arroyo Correa	0,166	0,351	0,247	0,304
Los Hornos	0,112	0,351	0,226	0,305
Villa Argüello	0,123	0,444	0,242	0,371
Parque Pereyra	0,143	0,372	0,249	0,426
Radio Provincia	0,102	0,403	0,237	0,295

En resumen, puede decirse que la actividad de la cadena del ^{232}Th fue la que mostró menor variabilidad en profundidad y espacio. La variación en profundidad de la actividad del ^{226}Ra observada para los suelos de la zona del Parque Pereyra y Villa Argüello podría deberse a que el radionucleido se encuentra formando complejos solubles en el suelo. Por su parte, la variabilidad de la actividad del ^{40}K con la profundidad podría deberse a dos factores: que las raíces de las plantas lo toman como nutriente; o al hecho que el porcentaje de arcillas aumenta con la profundidad, lo que podría provocar la retención del radionucleido por los minerales que la componen. Además, se pudo observar que existe una variabilidad de la actividad de los radionucleidos naturales para los suelos de la región de La Plata y, en general, la mayor actividad fue determinada para la zona de influencia estuárico marina.

5.3 Perfiles de actividad de ^{137}Cs

En esta sección se consideran los perfiles de actividad del ^{137}Cs , analizando los parámetros resultantes de ajustarlos con los modelos de transporte presentados en el Capítulo 1. Asimismo, se analizan los inventarios y la contribución a la tasa de dosis y dosis anual efectiva equivalente de este radionucleido.

Como se mencionó en el Capítulo anterior, los perfiles de actividad del ^{137}Cs en cada uno de los suelos estudiados mostraron diferencias entre ellos. Aquellos pertenecientes a la zona de influencia continental y el determinado para la zona de Villa Argüello presentan la forma asociada a perfiles de actividad dominados por procesos de convección y difusión. Por su parte, el perfil determinado para la zona de Arroyo Correa presenta una actividad constante hasta los 7,0 cm de profundidad, valor a partir del cual pareciera que dominan los procesos de difusión-convección. Finalmente, los perfiles del Parque Pereyra Iraola y Radio Provincia presentan la máxima actividad de ^{137}Cs en superficie.

Como fuera mencionado en el Capítulo 1, en la bibliografía se han publicado distintos grados de retención del Cs por parte de ciertos minerales asociados a cambios en el porcentaje de materia orgánica. Dado que los perfiles de C_{org} determinados en el presente trabajo son similares en forma y magnitud, las diferencias observadas en los perfiles de actividad del ^{137}Cs no se pueden atribuir a esta variable.

Del estudio mineralógico de los suelos se sabe que estos contienen cantidades apreciables de minerales capaces de adsorber en forma reversible o irreversible al ^{137}Cs . Una posible causa de la diferencia observada entre los perfiles de actividad del ^{137}Cs podría radicar en los distintos porcentajes de minerales que presenta cada suelo, lo que cambiaría la capacidad de cada uno de retener al Cs. Para evaluar este punto se analizaron los espectros gamma obtenidos de la fracción de arcilla. En la Tabla 5.12 se presentan los resultados de actividad del radionucleido tanto en las muestras crudas como en la fracción de arcilla, incluyendo el porcentaje de Cs retenido para cada una de las muestras (calculado según la ecuación (5.1)). El grado de retención del ^{137}Cs por parte de la arcilla varió entre el 32% y el 93%, resultando mayor para la muestra PP-1, es decir, para el suelo de la región del Parque Pereyra Iraola.

Tabla 5.12: Actividad de ^{137}Cs en muestras crudas ($^{137}\text{Cs}_{\text{cr}}$) y en la fracción de arcilla ($^{137}\text{Cs}_{\text{ar}}$), indicando el porcentaje de Cs retenido en la arcilla (% ret).

Suelo	$^{137}\text{Cs}_{\text{cr}}$ (Bq/kg)	$^{137}\text{Cs}_{\text{ar}}$ (Bq/kg)	% ret
EP-4	1,8±0,2	5±3	78±55
AC-5	2,4±0,2	5±1	38±11
LH-2	1,5±0,3	2±1	32±22
VA-3	1,8±0,3	1,9±0,8	61±36
PP-1	4,3±0,3	7±2	93±33
RP-1	3,2±0,3	8±2	41±14

Los estudios llevados a cabo por distintos autores en condiciones de laboratorio, indican que el ^{137}Cs puede ser retenido en forma irreversible por la illita. La Figura 5.21 muestra la variación del porcentaje de retención con el porcentaje de illita en suelos determinados en el presente trabajo.

Como puede observarse, en general, cuanto mayor es el porcentaje de illita presente en el suelo, mayor es el grado de retención del ^{137}Cs en el suelo, a excepción de la muestra de la zona de Los Hornos.

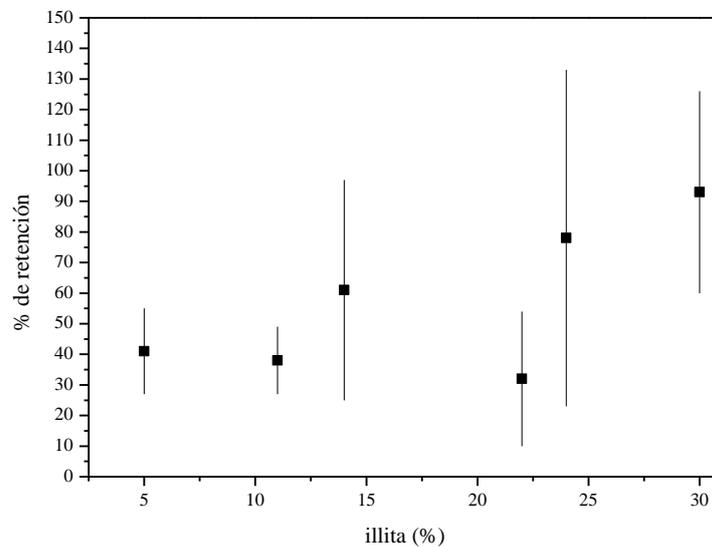


Figura 5.21: Porcentaje de retención de ^{137}Cs vs porcentaje de illita en suelo.

Por su parte, no se observa ninguna tendencia entre el grado de retención de ^{137}Cs en el suelo con los porcentajes de esmectitas y caolinita (ver Figura 5.22). Por lo tanto, parecería que el ^{137}Cs se está alojando en forma preferencial en la illita y no en la esmectitas y caolinita.

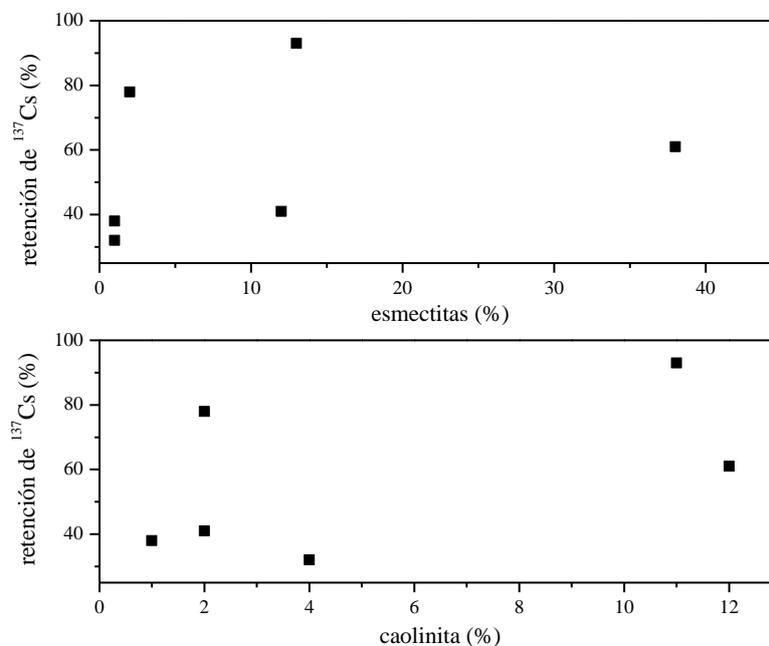


Figura 5.22: Retención de ^{137}Cs en suelos en función de a) % de esmectitas y b) % de caolinita.

5.3.1 Modelado

Como fue mencionado en el Capítulo 1, el modelo más utilizado para el ajuste de los perfiles de actividad de ^{137}Cs es el que considera la difusión, la convección y la dispersión hidrodinámica, llamado de aquí en más ODCDE (Bossew y Kirchner, 2004). La Figura 5.23 muestra los perfiles de actividad del ^{137}Cs (puntos para los valores experimentales) junto con el ajuste obtenido a partir de la utilización de este modelo (línea negra). En la Tabla 5.13 se presentan los valores obtenidos de los parámetros ajustados considerando el modelo ODCDE.

Si bien el modelo pudo utilizarse para el ajuste de todos los perfiles de actividad del ^{137}Cs , los parámetros obtenidos para el perfil del Parque Pereyra Iraola carecen de sentido, tanto por las magnitudes de los parámetros como por el hecho que los errores con los que fueron determinados son más grandes que las magnitudes mismas. Por su parte, el ajuste del perfil de la zona de Arroyo Correa no resultó satisfactorio. Estos hechos marcaron la necesidad de utilizar otro modelo para el ajuste de los perfiles de ^{137}Cs que tomase en cuenta otros procesos en el transporte del radionucleido.

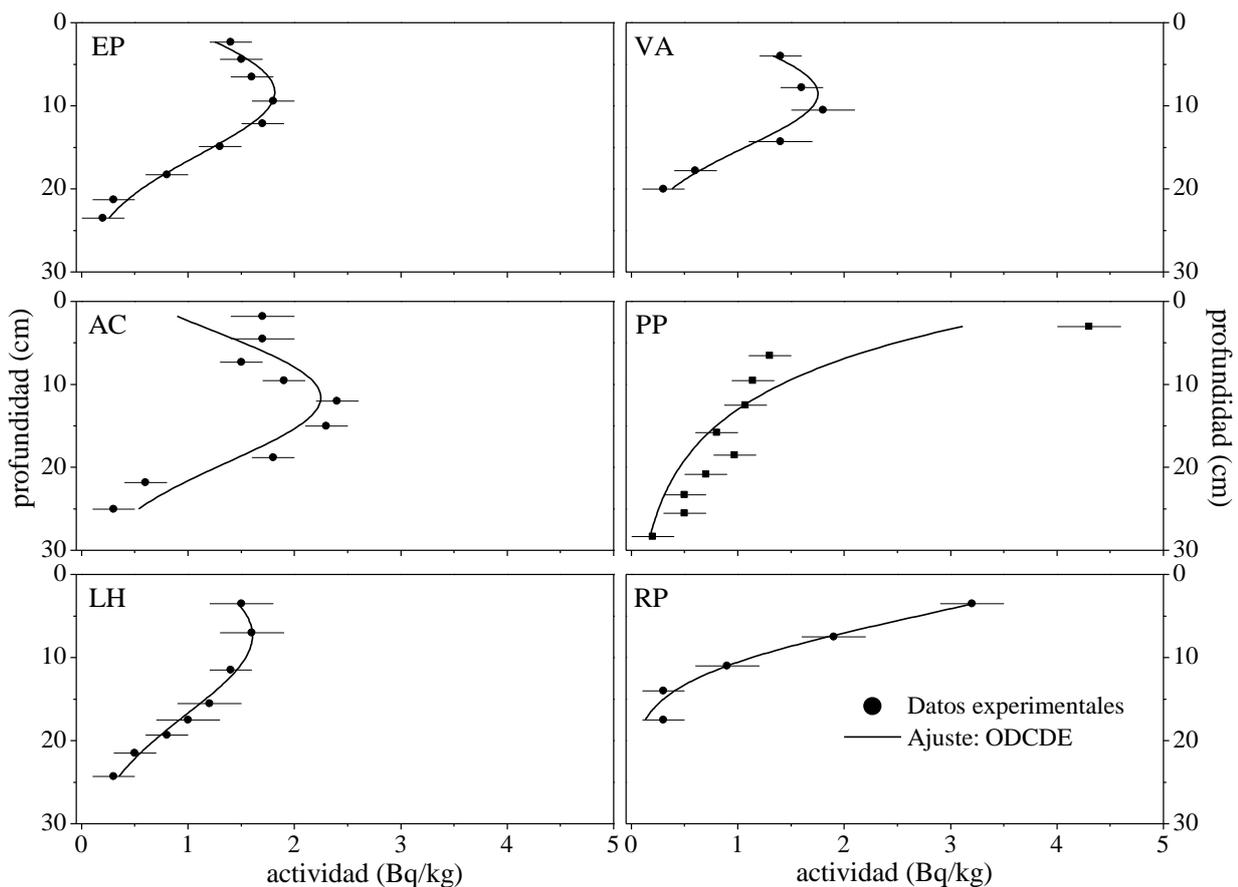


Figura 5.23: Perfiles de actividad del ^{137}Cs ajustados con el modelo que considera la difusión y la dispersión hidrodinámica (ODCDE). Los puntos indican los valores experimentales mientras que la línea continua representa el ajuste obtenido.

La presencia de illita en los suelos junto con el alto grado de retención del Cs determinado en alguno de los suelos, sugieren que la utilización del modelo que incluye la fijación irreversible del ^{137}Cs en la fase sólida del suelo, llamado de aquí en más ODCDFE (Antonopoulus-Domis et al., 1995 y Toso y Velasco, 2001), puede ser más adecuada. La Figura 5.24 muestra los perfiles de actividad del ^{137}Cs junto con el ajuste obtenido utilizando los dos modelos mencionados (línea negra ODCDE, línea roja ODCDFE). Los parámetros obtenidos del ajuste a los perfiles utilizando el modelo ODCDFE se presentan en la Tabla 5.13.

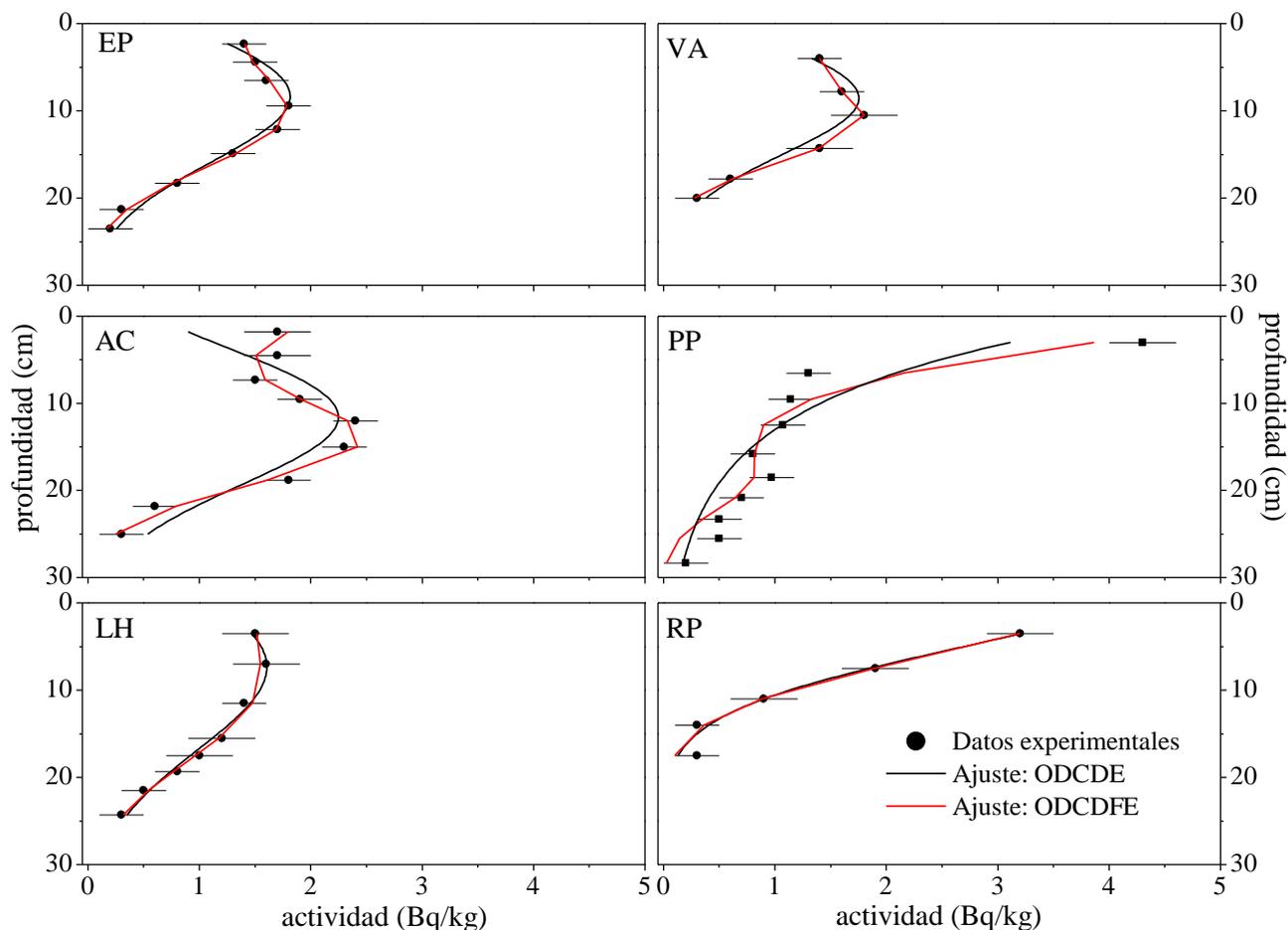


Figura 5.24: Perfiles de actividad de ^{137}Cs (puntos) junto con el ajuste utilizando los modelos sin retención irreversible (línea negra) y con retención irreversible (línea roja).

Como puede verse de la Figura, los perfiles de El Peligro, Los Hornos, Villa Argüello y Radio Provincia fueron ajustados satisfactoriamente con ambos modelos, dado que las curvas obtenidas se diferencian de los datos experimentales en menos de una desviación estándar. Para el caso de Arroyo Correa se observa una diferencia mayor a dos desviaciones estándar entre el valor experimental y el esperado por el modelo ODCDE para las actividades en superficie y a 7,3 cm de profundidad, mientras que los valores predichos por el modelo ODCDFE están acorde con los datos

experimentales en todo el rango de profundidad. En relación a los parámetros obtenidos usando el modelo ODCDFE para el Parque Pereyra Iraola, se observa que los parámetros obtenidos resultan más acordes a lo esperado, aunque el ajuste no es el óptimo.

Tabla 5.13: Parámetros obtenidos del ajuste de los perfiles de ^{137}Cs utilizando los modelos ODCDE y ODCDFE. Se incluyen los errores con los que fueron determinados los parámetros.

Suelo	ODCDE			ODCDFE			
	J_0 (Bq cm/kg)	D_{eff} (cm ² /a)	v_{eff} (cm/a)	J_0 (Bq cm/kg)	k_{eff} (a ⁻¹)	D_{eff} (cm ² /a)	v_{eff} (cm/a)
EP	80±3	0,8±0,1	0,15±0,01	92±4	0,011±0,003	0,43±0,08	0,23±0,02
AC	112±13	0,8±0,3	0,22±0,03	138±14	0,015±0,003	0,33±0,10	0,32±0,02
LH	87±3	1,1±0,2	0,11±0,02	102±21	0,011±0,017	0,73±0,71	0,21±0,14
VA	69±5	0,5±0,1	0,16±0,02	93±5	0,017±0,003	0,24±0,05	0,25±0,01
PP	106±57	56±6*10 ⁶	-6±7*10 ⁵	151±37	0,052±0,020	0,20*	0,43±0,20
RP	89±7	0,6±0,3	-0,03±0,07	88±60	0,0004±0,03	0,46±0,27	0*

La Figura 5.25 presenta los valores obtenidos a partir del ajuste utilizando los dos modelos propuestos para D_{eff} y v_{eff} . Se incluyen en la Figura los valores publicados para la provincia de San Luis, Argentina (Jury Ayub et al., 2007; 2008), Chile (Schuller et al., 1997; 2004) y los valores medios mundiales publicados por la IAEA, junto con los intervalos de datos observados (IAEA, 2010). Como puede verse, los valores determinados para los seis suelos, utilizando ambos modelos, son similares a los determinados para la provincia de San Luis y caen dentro del intervalo de valores mundiales publicados por la IAEA. Comparando los valores obtenidos con los resultados de suelos de Chile, se observa que los valores de D_{eff} y v_{eff} determinados para Argentina son mayores. Esto indicaría que los procesos de dispersión hidrodinámica y difusión en los suelos argentinos son más importantes que en los suelos de Chile. Debido a que los trabajos publicados acerca de los suelos chilenos no proveen información complementaria de las propiedades de los mismos, no se pueden extraer conclusiones extras.

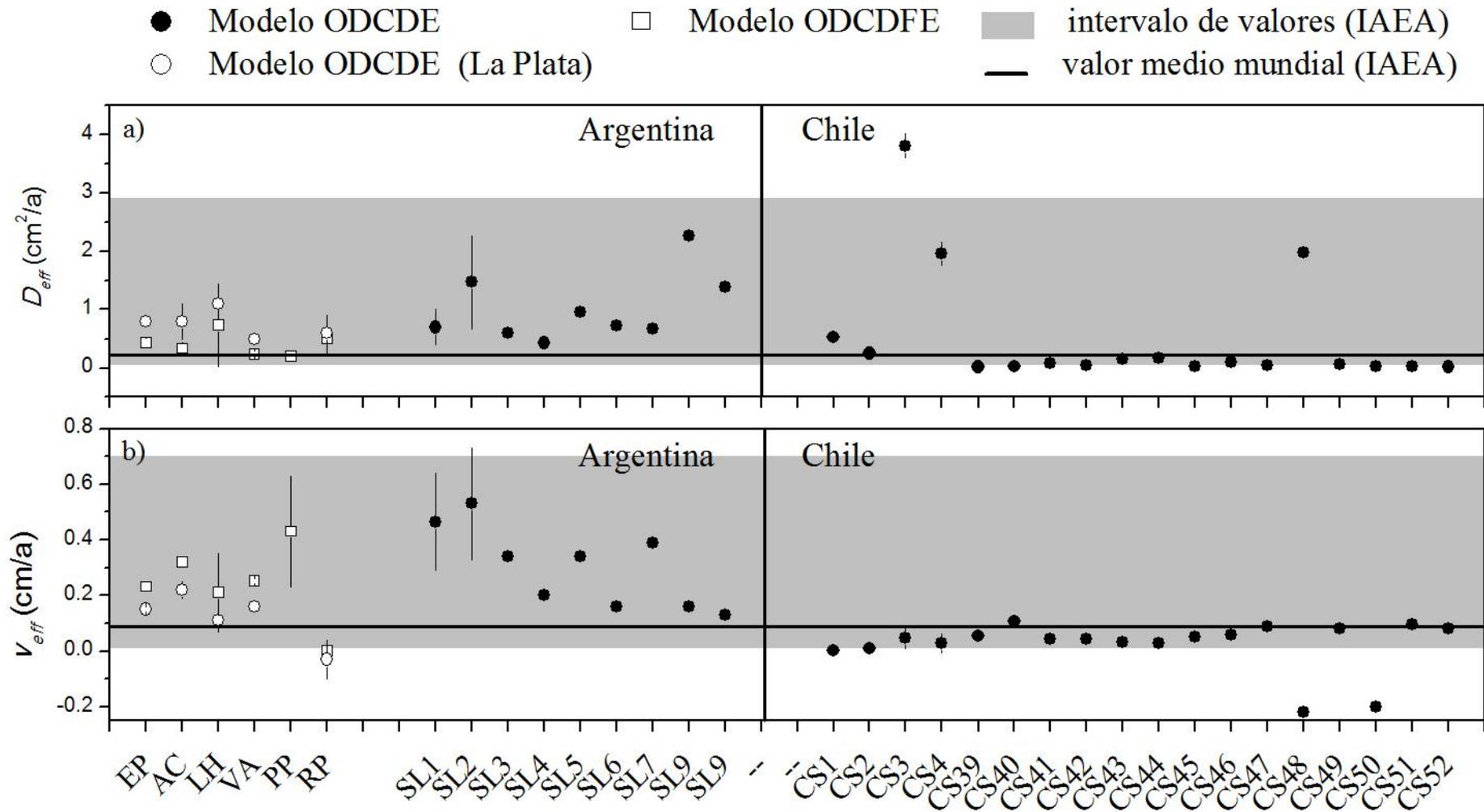


Figura 5.25: a) Coeficientes de difusión efectivo y b) velocidad de convección efectiva determinados en este trabajo, (símbolos vacíos) junto con valores publicados para suelos de la provincia de San Luis, Argentina y Chile (símbolos llenos).

5.3.2 Tasa de transferencia efectiva del estado móvil al ligado en forma irreversible

Como fuera mencionado en el Capítulo 1, la illita es capaz de adsorber en forma irreversible al ^{137}Cs , razón por la cual podría esperarse que la magnitud de k_{eff} estuviese relacionada con el porcentaje de dicho mineral en los suelos.

El valor de k_{eff} , obtenido de los ajustes para cada uno de los suelos estudiados, representa un coeficiente medio dado que el modelo supone que es constante con la profundidad. Para poder comparar k_{eff} con el contenido de illita en el suelo, se estimó un valor medio del porcentaje de dicho mineral para cada columna de suelo, limitado la profundidad hasta donde se detectó ^{137}Cs . Para esto se consideraron en conjunto las fracciones de arcilla y los porcentajes de los minerales en dicha fracción. Los valores obtenidos son presentados en la Tabla 5.14, mientras que la Figura 5.26 muestra el k_{eff} en función de dichos porcentajes.

Tabla 5.14: Porcentajes medios de illita (I) en la columna de suelo considerando para el cálculo sólo las profundidades en las que se detectó ^{137}Cs .

Suelo	I
EP	24
AC	12
LH	22
VA	14
PP	27
RP	5

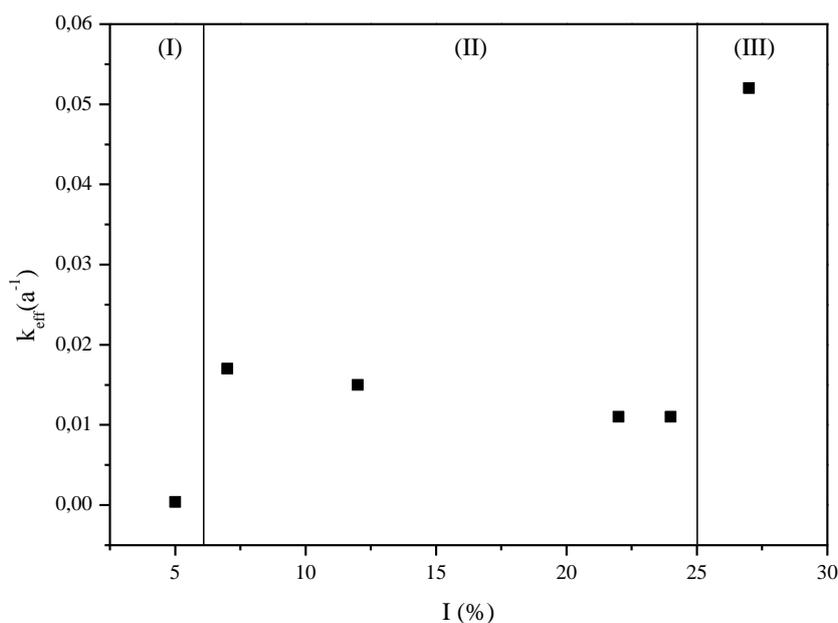


Figura 5.26: Tasa de transferencia efectiva del estado móvil al ligado en forma irreversible, k_{eff} , como función del porcentaje de illita.

Como puede verse de la Figura 5.26, la relación entre los valores determinados para k_{eff} y los porcentajes de illita no es evidente. En principio resultan tres zonas diferentes: una de bajo porcentaje de illita, donde el valor de k_{eff} resulta despreciable; una zona media donde k_{eff} se mantiene prácticamente constante con la concentración de illita y una tercera zona de alto contenido de illita donde el valor del coeficiente aumenta notoriamente. Para poder arribar a resultados más concluyentes se requiere del estudio de un mayor número de perfiles de actividad, sobre todo para suelos con porcentajes relativamente bajos y altos de illita.

Si bien la tasa de transferencia efectiva del estado móvil al ligado en forma irreversible, k_{eff} , es determinada para toda la columna de suelo, se puede analizar como se relaciona esta magnitud con el grado de retención del ^{137}Cs para las muestras individuales de cada perfil (Figura 5.27). En este caso, podrían establecerse dos zonas de diferente comportamiento: una donde al cambiar la retención la tasa de transferencia efectiva del estado móvil al ligado permanece constante y otra, donde el coeficiente aumenta notoriamente para valores mayores de retención.

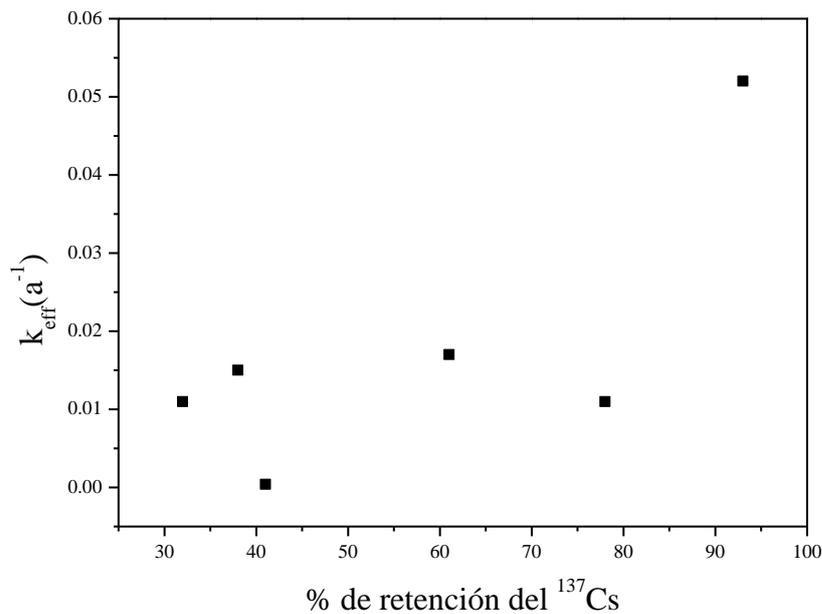


Figura 5.27: Tasa de transferencia efectiva del estado móvil al ligado en forma irreversible, k_{eff} , como función del porcentaje de retención del ^{137}Cs .

En la bibliografía se expone que el pH podría afectar la retención del ^{137}Cs por parte de los minerales del suelo. En la Figura 5.28 se muestra el k_{eff} obtenido para cada suelo en función del pH medio de la columna, calculado en el rango de profundidades donde se detectó ^{137}Cs . Como puede verse, el máximo valor de k_{eff} se obtuvo para un pH

de 8.2. Se estudiaron la retención del ^{137}Cs para diferentes tipos de suelo en función del pH en experimentos en *batch* (Giannakopoulou et al., 2007). Como puede observarse de la Figura 5.28, los autores determinan un máximo en K_D (llamado coeficiente de distribución) para valores de pH cercanos a 8. Si bien la variable determinada en estos experimentos no tiene exactamente el mismo significado que el k_{eff} determinados aquí, se observa que los valores obtenidos aquí están acorde a lo obtenido en dicho trabajo. Más aún, el máximo en k_{eff} es obtenido para un pH 8,2. Este suelos corresponde a la zona de Parque Pereyra Iraola también se determinan las mayores concentraciones de arcilla e illita. Estos resultados avalan la representatividad del parámetro k_{eff} determinado a partir del ajuste de los perfiles de actividad.

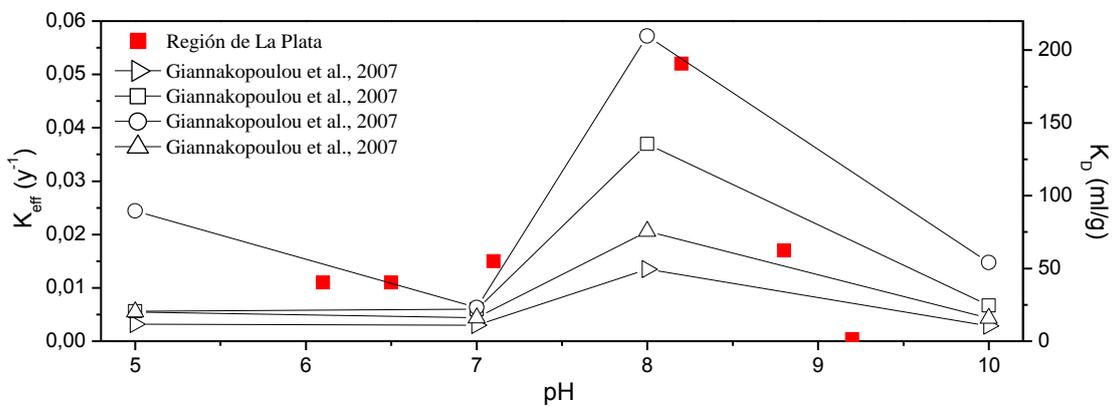


Figura 5.28: Tasa de transferencia efectiva del estado móvil al ligado en forma irreversible en función del pH del suelo.

5.3.3 Inventarios

A partir de los datos de actividad de ^{137}Cs en la columna de suelo, es posible estimar el inventario de dicho radionucleido a partir de la expresión:

$$I = 10 \sum_{i=1}^n \delta_i A_i \Delta x_i \quad (5.2)$$

donde I es el inventario en Bq/m^2 y δ_i y A_i la densidad del suelo en g/cm^3 y la actividad de ^{137}Cs de la capa i de suelo de espesor Δx_i , en cm. Dado que los muestreos de suelo se realizaron en diferentes años, y a fin de comparar con inventarios publicados en la bibliografía, es necesario corregir los inventarios calculados tomando en cuenta el decaimiento radioactivo del ^{137}Cs , obteniendo así el inventario corregido IC_{1965} :

$$IC_{1965} = I * \exp(\lambda \Delta t)$$

siendo λ la constante de decaimiento del ^{137}Cs y Δt el año de muestreo menos 1965. Se escogió 1965 como año de referencia debido a que es el año donde se observó el máximo en la lluvia radioactiva (ver Capítulo 1). La Tabla 5.15 presenta los inventarios (corregidos para 1965) determinados a partir de los datos experimentales, considerando una densidad constante del suelo ($1,1 \text{ g/cm}^3$ (Hurtado et al., 2006a)) y una densidad que aumenta linealmente con la profundidad. Dado que no se cuenta con datos de perfiles de densidad del suelo para los suelos de la región de La Plata, se ha supuesto, basado en perfiles de densidad encontrados en la bibliografía (ref), una densidad que aumenta linealmente con la profundidad, desde $1,2 \text{ g/cm}^3$ en superficie a $2,0 \text{ g/cm}^3$ para los 50 cm de profundidad. Los resultados se presentan gráficamente en la Figura 5.30. Si bien se observan diferencias de más del 20% en algunos de los inventarios, los inventarios están en buen acuerdo entre ellos, dentro del error experimental. Por supuesto, esto fue realizado sobre un supuesto acerca del comportamiento de la densidad del suelo, lo que refleja la necesidad de la determinación de la densidad del medio difusor.

Tabla 5.15: Inventarios de ^{137}Cs , en Bq/m^2 , determinados a partir de los datos experimentales (DE) considerando densidad constante y variable del suelo. Se incluyen los resultados obtenidos del ajuste con ambos modelos.

Suelo	IC_{1965} (DE, ρ constante)	IC_{1965} (DE, ρ variable)	Inventario (ODCDE)	Inventario (ODCDFE)
EP	829±148	1012±176	880±33	1012±44
AC	1184±178	1515±212	1232±143	1518±154
LH	792±203	1103±263	968±33	1122±231
VA	740±148	954±183	759±55	1023±55
PP	1095±178	1273±213	-	1661±407
RP	926±146	1002±178	979±77	968±660

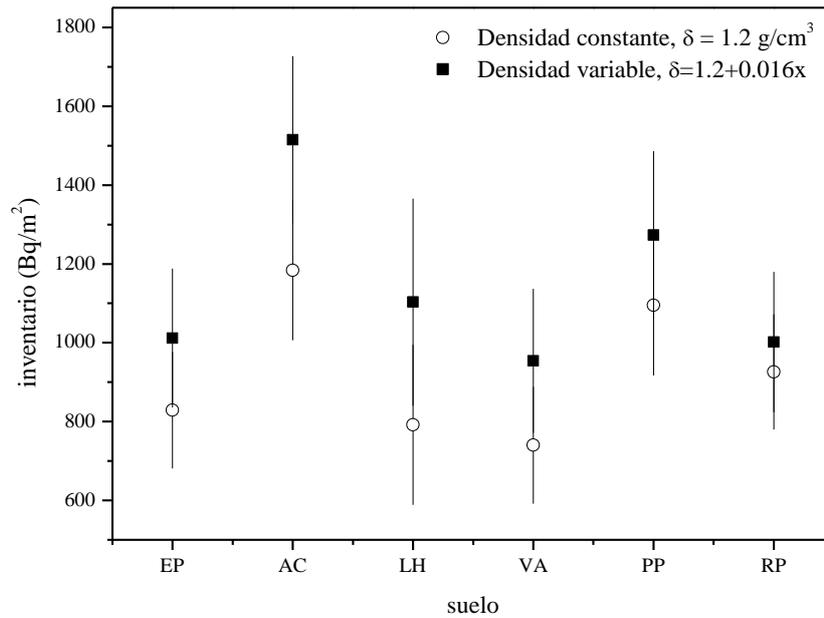


Figura 5.29: Inventarios de ^{137}Cs calculados a partir de los valores de actividad determinados para cada capa, considerando densidad constante y densidad variable del suelo.

En la Tabla 5.15 se incluyen también los inventarios estimados a partir del parámetro J_0 de los modelos utilizados. Como puede verse en la Figura 5.30, los inventarios calculados a partir de los datos experimentales, considerando densidad del suelo constante, concuerdan razonablemente con aquellos predichos por ambos modelos.

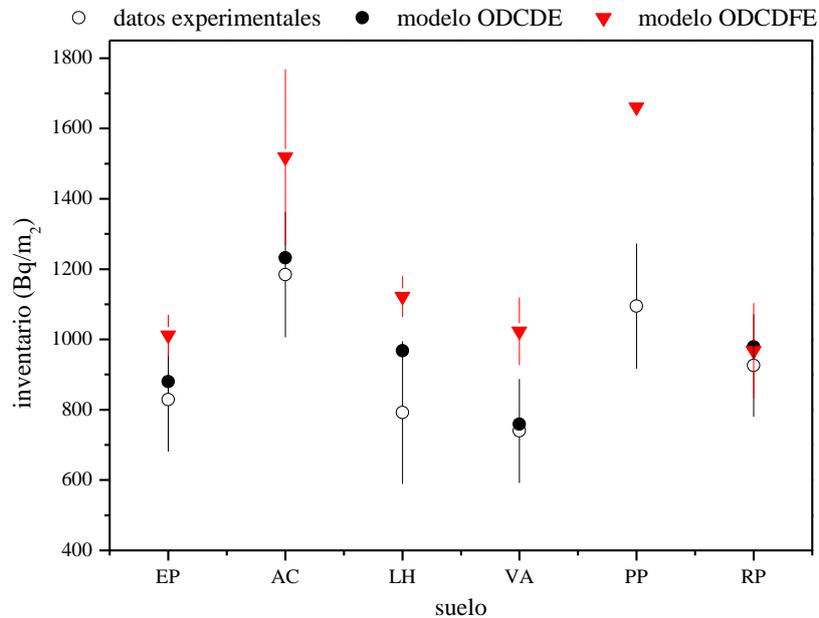


Figura 5.30: Inventario de ^{137}Cs obtenido de los datos experimentales y los modelos de migración considerados.

El inventario medio de ^{137}Cs determinado para la región de La Plata es de $928 \pm 168 \text{ Bq/m}^2$, cercano al valor determinado de 1058 Bq/m^2 para la ciudad de Buenos Aires (Cialella et al., 2003) y alrededor de la mitad del inventario medio determinado para la región de la Pampa Ondulada, 2424 Bq/m^2 (Bujan et al., 2000; 2003). Además el inventario obtenido está dentro del intervalo de valores determinados para la provincia de San Luis, 745 Bq/m^2 a 1877 Bq/m^2 (Juri Ayub et al., 2007; 2008) y resulta compatible con el valor predicho por la UNSCEAR para la correspondiente banda latitudinal (UNSCEAR, 2008). La similitud entre los valores encontrados en el presente trabajo y la literatura sugiere que la fuente de ^{137}Cs en la región de La Plata son los ensayos nucleares atmosféricos realizados en el Hemisferio Sur, descartando otra/s contribuciones antropogénicas significativas en la región de estudio.

La Figura 5.31 a) muestra los inventarios de ^{137}Cs determinados en este trabajo, junto con los determinados en otras regiones de Argentina (Juri Ayub et al., 2007; 2008; Bujan et al., 2000; 2003), Chile (Schuller et al., 1997, 2004) y Brasil (Corrochel et al., 2005; Handl et al., 2008) como función de la latitud sur, incluyendo los valores esperados para cada banda latitudinal (UNSCEAR, 2008). En la Figura 5.31, b) se presenta la tasa de precipitación anual media como función de la latitud. En la Figura 5.31, c) se representa el inventario de ^{137}Cs como función de la tasa de precipitación mientras que en la Figura 5.31, d) se muestra el inventario como función de la longitud oeste.

Analizando el inventario en relación a las bandas latitudinales, se observa que los datos experimentales están en acuerdo con los valores predichos por UNSCEAR, con excepción de la región de Chile, donde los valores determinados son mayores que los predichos por el modelo propuesto por el organismo. Si se comparan las Figura 5.31 a) y b) se observa que la precipitación anual media y el inventario presentan distribuciones similares, lo que podría indicar que el inventario de ^{137}Cs depende de la tasa de precipitación anual media. De hecho, en la Figura 5.31 c) se ve claramente esta relación; es decir, el inventario de ^{137}Cs aumenta con el aumento de la tasa de precipitación anual media. Esta misma tendencia fue también observada en España (Legarda et al., 2011), donde no sólo está presente el ^{137}Cs proveniente de los ensayos nucleares en el Hemisferio Norte, sino también aquel proveniente del accidente producido en la central nuclear de Chernóbil, reforzando las observaciones extraídas del análisis de los datos de América del Sur.

Cuando se analiza el inventario como función de la longitud (ver Figura 5.31 d)) puede verse que en algunos suelos de Chile se observan inventarios mayores a los observados en Argentina. Este hecho podría deberse a que la presencia de la Cordillera de los Andes genera tasas de precipitación anual media mayores del lado chileno, produciéndose un mayor lavado de la atmósfera en dicha región y, por lo tanto, depositándose más ^{137}Cs .

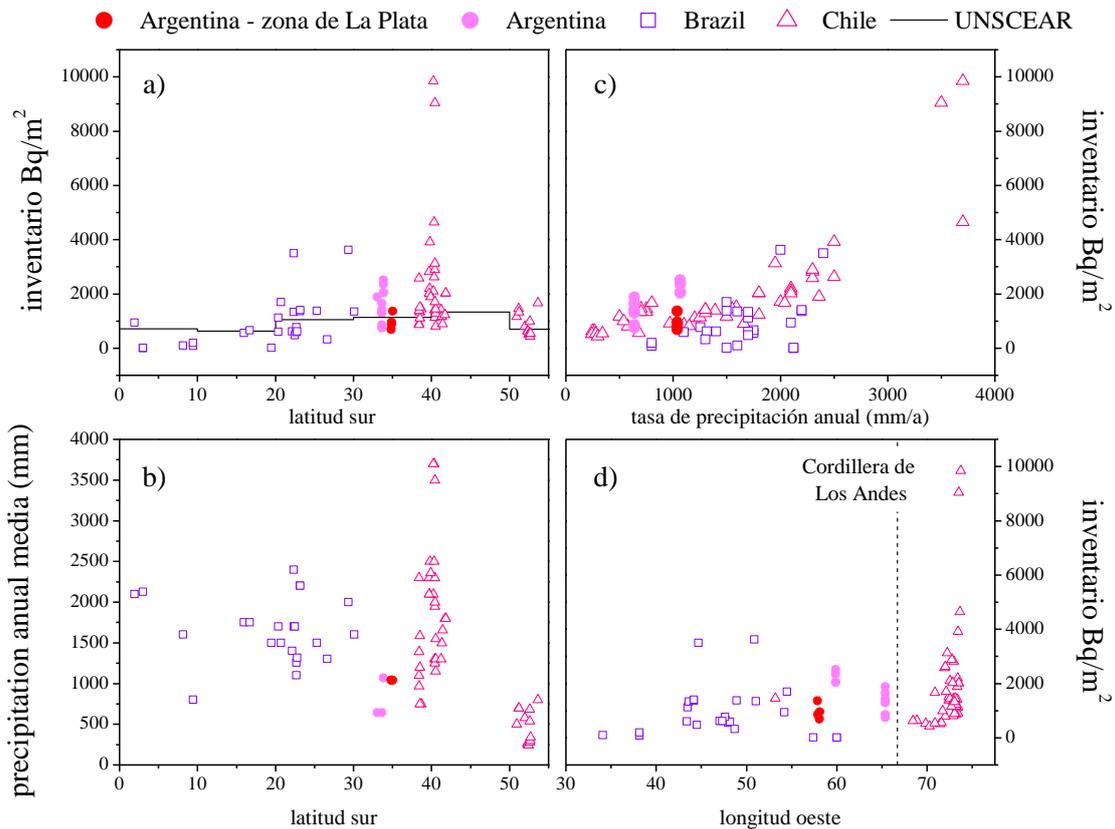


Figura 5.31: a) Inventarios de ^{137}Cs corregidos para 1965 como función de la latitud sur. La línea sólida representa el valor predicho por la UNSCEAR (UNSCEAR, 2008). b) Tasa de precipitación anual media como función de la latitud sur. c) Inventarios de ^{137}Cs corregidos para 1965 como función de la tasa de precipitación anual media y d) inventarios de ^{137}Cs corregidos para 1965 como función de la longitud oeste.

5.3.4 Contribución del ^{137}Cs a la dosis

La contribución a la dosis recibida por el hombre debido a la presencia del ^{137}Cs proveniente de los ensayos nucleares puede estimarse utilizando la ecuación (1.10). El valor de la densidad de depósito se corresponde con el inventario determinado a partir de los datos experimentales. Como fue mencionado en el Capítulo 1, existen factores que permiten convertir depósito en dosis que consideran que todo el ^{137}Cs está en superficie o bien que la actividad del radionucleido disminuye exponencialmente con la profundidad. Dado que en este trabajo se ha encontrado que la distribución del ^{137}Cs en

los suelos de la región de La Plata no disminuye exponencialmente con la profundidad ni se encuentra localizada en superficie, no es posible utilizar dichos coeficientes a fin de estimar la contribución a la dosis del ^{137}Cs . Sin embargo, se puede realizar una estimación de la dosis que se recibió alrededor de 1965, utilizando el depósito total del ^{137}Cs en el suelo. Los resultados se presentan en la Tabla 5.16.

Como puede verse, tanto la tasa de dosis absorbida como la dosis efectiva anual equivalente, ambas debidas a la presencia del ^{137}Cs en suelo, son dos órdenes de magnitud más bajas que las determinadas por el decaimiento de los radionucleidos naturales (ver Tabla 5.11). Por lo tanto, la presencia del ^{137}Cs proveniente de los ensayos nucleares atmosféricos no presenta riesgo radiológico para la población de la ciudad de La Plata.

Tabla 5.16: Contribuciones a la tasa de dosis absorbida y dosis efectiva anual equivalente para 1965 por la presencia de ^{137}Cs en el suelo.

Suelo	D(nGy/h)	DEAE (mSv)
EP	0,8±0,2	0,0019±0,0004
AC	1,2±0,2	0,0027±0,0004
LH	0,8±0,2	0,0018±0,0005
VA	0,8±0,2	0,0017±0,0005
PP	1,1±0,2	0,0025±0,0004
RP	0,9±0,2	0,0021±0,0004

En resumen, el único radionucleido emisor gamma encontrado en los suelos de la región de La Plata es el ^{137}Cs . Del análisis de los resultados se puede inferir que su presencia puede ser atribuida a los ensayos nucleares atmosféricos realizados en el Hemisferio Sur. Los inventarios calculados resultaron similares para todas las zonas, pero las distribuciones de actividad en la columna de suelo mostraron algunas diferencias, las cuales pueden ser atribuidas a distintas propiedades de los suelos. El suelo con mayor contenido de arcilla e illita (Parque Pereyra Iraola) es el que mostró el mayor porcentaje de retención del ^{137}Cs y la mayor tasa de transferencia del estado móvil al ligado en forma irreversible. Por su parte, parecería que hay una tendencia en el comportamiento de la tasa de transferencia del estado móvil al ligado en forma irreversible con el contenido de illita en los suelos. Los valores de velocidad de convección efectiva y coeficiente de difusión efectivo utilizando ambos modelos resultaron del orden de lo encontrado en la bibliografía. Uniendo la información disponible de los inventarios de ^{137}Cs en América del Sur, podría decirse que los valores determinados experimentalmente están en acuerdo a lo esperado por el modelo

latitudinal de UNSCEAR, con excepción de algunos suelos chilenos, donde hay mayores inventarios.

Bibliografía

- Antonopoulos-Domis, M., Clouvas, A., Hiladakis, A., Kadi, S. 1995. Radiocesium distribution in undisturbed soil: Measurements and diffusion-advection model. *Health Physics*, 69,6, 949-953.
- Araujo dos Santos Junior, J., Ferrerira Cardoso, R.J.J., da Silva, C.M., Silveira S.V. and dos Santos Amaral, R., 2005. Analysis of the 40K Levels in soil using Gamma Spectrometry. *Brazilian Archives of Biology and Technology*, 48, 221-228.
- Bossew, P., Kinrchner, G., 2004. Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil. Part 1: the convection–dispersion equation revisited. *Journal of Environmental Radioactivity*, 73, 127–150.
- Bujan, A., Santanatoglia, O. J., Chagas, C., Massobrio, M., Castiglioni, M., Yañez, M., Ciallella, H., Fernandez, J., 2000. Preliminary study on the use of the ^{137}Cs method for soil erosion investigation in the pampean region of Argentina. *Acta Geologica Hispanica*, 35, 271-277.
- Bujan, A., Santanatoglia, O. J., Chagas, C., Massobrio, M., Castiglioni, M., Yañez, M., Ciallella, H. & Fernandez, J., 2003. Soil erosion evaluation in a small basing though the use of ^{137}Cs technique. *Soil & Tillage Research*, 69, 127–137.
- Ciallella, H.E.; Fernandez, J.A.; Lewis, E.C. y Quintana, E.E. 2003. Niveles ambientales de $\text{Sr}90$ y ^{137}Cs Provenientes del fall-out en la República Argentina. VII Congreso Argentino de Protección Radiológica y Seguridad Nuclear.
- Coppens, R., 1979. La Radiactividad de las rocas. Editorial Universitaria de Buenos Aires.
- Correchel, V., Oliveira Santos Bacchi, O., Reichardt, K., Cereci de Maria I., 2005. Random and systematic spatial variability of ^{137}Cs inventories at references sites in south-central Brazil. *Scientia Agricola*, 62,173.
- Giannakopoulou, F., Haidouti, C., Chronopoulou, A., Gasparatos, D., 2007. Sorption behavior of cesium on various soils under different pH levels. *J. Hazard. Mater.* 149, 553-556.
- Gimenez, J.E., Cabral, M.G., Hurtado, M.A., 2005. Elaboración y Transferencia de cartografía Temática e Implementación de un Sistema de Información Geográfica para el Planeamiento (Partido de Berisso). Comisión de Investigaciones Científicas de la Provincia de Buenos Aires. Ed. Universidad Nacional de La Plata.
- Handl, J., Sachse, R., Jakob, D., Michel, R., Evangelista, H., Gonçalves, A. C., De Freitas, A. C., 2008. Accumulation of ^{137}Cs in Brazilian soils and its transfer to plants under different climatic conditions. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99, 271- 287.
- Hurtado, M.A., Giménez, J.E., Cabral, M.G., 2006a. Análisis ambiental del partido de La Plata. Aportes al ordenamiento territorial. Consejo Federal de Inversiones. Ed. Universidad Nacional de La Plata.
- Hurtado, M.A., Giménez, J.E., Cabral, M.G., 2006b. Suelos del partido de Berazategui como base para el planeamiento ambiental y ordenamiento territorial. Contrato de Obra entre Consejo Federal de Inversiones y Facultad de Ciencias Naturales y Museo. Ed. Universidad Nacional de La Plata.
- IAEA, 2010. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. Technical Reports SeriEs No. 472.
- Johnson, J.H., Cardile, C.M., 1987. Iron Substitution in montmorillonite, illite and glauconite by ^{57}Fe Mössbauer spectroscopy. *Clays and Clay Minerals*, 35, 3, 170-176, 1987.
- Juri Ayub, J., Rizzotto, M., Toso, J., Velasco, H., 2007. ^{137}Cs deposition and vertical migration in soils from Argentina. Proc. International. Conf. on Environ. Radioactivity: From Measurements and Assessments to Regulation, Vienna, Austria, www-pub.iaea.org/mtcd/meetings/announcements.asp?confid=145.
- Juri Ayub, J., Velasco, R.H., Rizzotto, M., Quintana E., Aguiar J., 2008. ^{40}K , ^{137}Cs and ^{226}Ra soil and plant content in semi-natural grasslands of Central Argentina. The Natural Radiation Environment—8th International Symposium, edited by A. S. Paschoa, American Institute of Physics, ISBN 978 0 7354 0559.
- Legarda, F., Romero, L.M., Herranz, M., Barrera, M., Idoeta, R., Valiño, F., Olondo, C., Caro, A., 2011. Inventory and vertical migration of ^{137}Cs in Spanish mainland soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 102, 589-597.
- Malanca A., Gaidolfi L., Pessina, V. and Dallara, G., 1996. Distribution of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in soils of Rio Grande do Norte (Brazil). *Journal of environmental radioactivity*, 30, 55-67.

Malanca, A. y Gaidolfi L., 1996. Natural Radiation Exposure in a municipality of the Brazilian Sertao. *Environment International*, 22, 2, 213-217.

Marco-Brown, J. L., Barbosa-Lema, C. M., Torres Sánchez, R.M., Mercader, R.C., M., dos Santos Afonso, Adsorption of picloram herbicide on iron oxide pillared montmorillonite. *Applied Clay Science*, 58, 25–33.

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

Schuller, P., Ellies, A., Kirchner, G., 1997. Vertical migration of fallout ¹³⁷Cs in agricultural soils from southern Chile. *Science of the Total Environment*, 193, 197–205.

Schuller, P., Bunzl, K., Voigt, G., Ellies, A., Castillo, A., 2004. Global fallout ¹³⁷Cs accumulation and vertical migration in selected soils from south Patagonia, *Journal of Environmental Radioactivity*, 71, 43-60.

Toso, J.P., Velasco, R.H. 2001. Describing the observed vertical transport of radiocesium in specific soils with three time-dependent models. *Journal of Environmental Radioactivity*, 53, 133-144.

UNSCEAR., 2008. In: Sources and effects of ionizing radiation, Report of the General Assembly with Scientific Annexes, Vol. 1, New York.

Walpole, R.E., Myers, R.H., Myers, S.L., 1999. Probabilidad y Estadística para Ingenieros, 6ta edición, Pearson.

Capítulo 6: Conclusiones y Perspectivas

Los resultados del trabajo desarrollado acerca del estudio del contenido de radionucleidos emisores gamma en suelos de la provincia de Buenos Aires permitieron arribar a las siguientes conclusiones.

En cuanto a la actividad del ^{232}Th en el suelo:

- ✓ Fue la menos variable en profundidad y espacio. Si bien se pudo asignar un valor medio de actividad a cada perfil, no se logró establecer un valor medio para la región de La Plata.
- ✓ En las muestras superficiales de la región de La Plata fueron similares entre si y acorde con el valor medio mundial. Además, se encuentran en el intervalo de actividades determinadas para Uruguay y muy por debajo de aquellas publicadas para la región de Sertao, Brasil. El intervalo de actividad superficial encontrado fue de 30 Bq/kg a 46 Bq/kg.

En cuanto a la actividad de la cadena de ^{238}U (^{226}Ra) en el suelo se puede decir que:

- ✓ Fue constante en profundidad para 4 de los 6 suelos estudiados y al igual que para el torio, no se pudo establecer un valor medio de actividad para la región. La variabilidad en profundidad en los dos perfiles, correspondientes a dos de los suelos pertenecientes a la zona de influencia estuárico marina, podría ser atribuida a la presencia de carbonatos, dado que el Ra se combina con dichos elementos para formar compuestos solubles.
- ✓ Considerando las medidas de muestras superficiales en conjunto con los promedios calculados y las muestras superficiales de los perfiles, se encontró que la actividad del ^{226}Ra varió entre 21 Bq/kg y 69 Bq/kg. Las mayores actividades fueron encontradas en la región del Parque Pereyra Iraola, noroeste de la ciudad de La Plata, en las cercanías del Río de La Plata. Los valores determinados en esta región se asemejan aquellos determinados en suelos de la provincia de San Luis. Sin considerar la zona mencionada, las actividades encontradas en la mayoría de los suelos estuvieron por debajo del valor medio mundial y de los publicados para la región de Sertao, Brasil y, siendo en general mayores que las encontradas en suelos uruguayos.

Las principales conclusiones acerca de la actividad del ^{40}K son que:

- ✓ Los valores encontrados resultaron en un orden de magnitud mayor que la actividad de la cadena del ^{232}Th y el ^{238}U (^{226}Ra). La tendencia general fue que la actividad aumenta con la profundidad. Esto podría ser explicado mediante dos procesos: la toma de K por parte de las plantas y la fijación del radionucleido en los minerales del suelo. La semejanza en el comportamiento de los perfiles de Fe^{3+} y los perfiles de actividad del ^{40}K apoyan la hipótesis de la fijación.
- ✓ En superficie la actividad varió entre 476 Bq/kg y 873 Bq/kg, siendo mayor para la zona del Parque Pereyra Iraola.

En relación a las correlaciones entre las distribuciones de actividad y los minerales del suelo y/o entre las actividades de los distintos radionucleidos entre sí se puede decir que:

- ✓ Analizando la correlación entre las actividades de los radionucleidos naturales, se determinó una relación positiva y significativa entre las actividades del Ra y del K y entre el Th y el K, no así entre las de Ra y Th. Esto podría deberse a que el Th se encuentra mayormente formando compuestos insolubles, mientras que el Ra forma parte de compuestos solubles, lo que haría que la geoquímica de ambos radionucleidos en el suelo sea diferente. Sin embargo, al tomar en cuenta conjuntamente la información de actividad en suelos de distintas partes de mundo, también se obtuvo una correlación positiva y significativa entre las actividades de Ra y de Th.
- ✓ Al analizar la relación de la actividad de los radionucleidos en las muestras crudas y los minerales presentes en los suelos se observó que los radionucleidos naturales no presentaron correlación con el contenido de illita en el suelo. Por su parte, tampoco se observó correlación entre la actividad del ^{226}Ra y el porcentaje de esmectitas, ni entre la actividad del ^{40}K y el contenido de caolinita. Para extraer conclusiones más específicas se requieren de estudios adicionales.
- ✓ Al estudiar la actividad del ^{40}K en la fracción de arcilla, el porcentaje más alto de retención se encontró en aquel suelo con mayor contenido de illita (Parque Pereyra Iraola), no encontrándose correlación evidente para la esmectita y la caolinita.
- ✓ Analizando la correlación entre las actividades de los radionucleidos naturales y las fases de Fe, se observó una correlación significativa y negativa con las fases magnéticas (hematita y magnetita). Esto podría indicar que estos óxidos no son capaces de

incorporar los radionucleidos en sus estructuras. Además, se obtuvo en todos los casos una correlación significativa y positiva entre el sitio $\text{Fe}^{3+}(\text{I})$ y las actividades de los radionucleidos naturales, contrario con los sitios $\text{Fe}^{3+}(\text{II})$ y Fe^{2+} , donde no se obtuvo correlación. Así, es de esperarse que los radionucleidos naturales no se alojen en sitios de tipo $\text{Fe}^{3+}(\text{II})$ y Fe^{2+} .

Comparando las actividades determinadas en muestras superficiales de las regiones de Ezeiza y La Plata se pudo concluir que las actividades de los radionucleidos aquí estudiados son similares a la de los suelos de la región de La Plata.

A partir de actividades obtenidas en los suelos de las regiones de La Plata y Ezeiza se pudo hacer una estimación de la tasa de dosis absorbida y la dosis anual efectiva equivalente concluyendo que:

- ✓ La tasa de dosis absorbida en la región de La Plata varió entre 55 nGy/h y 91 nGy/h, mientras que la dosis anual efectiva equivalente para adulto varió entre 0,068 mSv y 0,110 mSv. Los mayores valores se presentaron en las regiones de Villa Argüello y el Parque Pereyra Iraola. En estas regiones las dosis calculadas sobrepasan levemente los valores medios mundiales, mientras que para el resto de las zonas estudiadas los valores estuvieron acorde al valor medio mundial.
- ✓ Las tasas de dosis absorbida y las dosis anuales equivalentes efectivas determinadas para la región de Ezeiza no mostraron diferencias significativas con las determinadas para la región de La Plata.
- ✓ Considerando conjuntamente los valores de dosis medidos en el campo (dosis externa total) y los valores de dosis determinados por el decaimiento de los radionucleidos en los suelos, se estableció que la contribución a la dosis efectiva equivalente total por parte del decaimiento de los radionucleidos en suelos, para la región de La Plata, está entre el 30 % y el 43%.

En cuanto a los perfiles de ^{137}Cs se puede mencionar que:

- ✓ La actividad de ^{137}Cs varió en profundidad.
- ✓ Los perfiles de actividad del ^{137}Cs mostraron diferencias entre sí.
- ✓ Los porcentajes de retención del radionucleido fueron mayores para los suelos con mayor concentración de arcilla.

- ✓ No todos los perfiles pudieron ser ajustados con el modelo más utilizado en la bibliografía, el de convección-difusión.
- ✓ El hecho de no poder ajustar todos los perfiles con el modelo de convección-difusión se atribuyó al contenido relativamente alto de arcilla e illita en los suelos, mineral conocido por adsorber al ^{137}Cs en forma irreversible.
- ✓ Se realizó un análisis de los perfiles de actividad utilizando el modelo de convección-difusión-fijación. Según nuestro conocimiento, este modelo nunca antes había sido empleado en forma completa.
- ✓ La velocidad de convección aparente varió entre $-0,03 \text{ cm/a}$ y $0,22 \text{ cm/a}$ para el caso del considerar el modelo sin fijación y entre 0 cm/a y $0,43 \text{ cm/a}$ si se toma en cuenta el modelo que considera la fijación irreversible.
- ✓ El coeficiente de difusión aparente obtenido con el modelo sin fijación varió entre $0,5 \text{ cm}^2/\text{a}$ y $1,1 \text{ cm}^2/\text{año}$, mientras que el intervalo determinado a partir del ajuste con el modelo con fijación irreversible fue de $0,2 \text{ cm}^2/\text{a}$ a $0,73 \text{ cm}^2/\text{a}$.
- ✓ Los valores obtenidos de velocidad de convección aparente y coeficiente de difusión aparente utilizando ambos modelos están en el orden de los determinados para la provincia de San Luis y caen dentro del intervalo de valores mundiales publicados por la IAEA. Comparando con los parámetros obtenidos para suelos chilenos, se puede decir que tanto la velocidad de convección como el coeficiente de difusión resultaron mayores para Argentina.
- ✓ En cuanto a la tasa de transferencia del estado móvil al ligado en forma irreversible obtenida del ajuste de los perfiles de actividad, se observó que fue mayor para el suelo con contenido de illita más alto, correspondiente a la región del Parque Pereyra Iraola, con un valor de $0,52 \text{ a}^{-1}$. Este resultado está acorde al porcentaje de retención del ^{137}Cs determinado para la muestra de esta columna de suelo. En el resto de los suelos, las tasas de transferencia fueron similares, variando entre $0,011 \text{ a}^{-1}$ y $0,017 \text{ a}^{-1}$.

En lo que respecta al inventario de ^{137}Cs se puede concluir que:

- ✓ Los inventarios calculados y corregidos para el año 1965 estuvieron en el intervalo de 740 Bq/m^2 a 1184 Bq/m^2 . Los valores están acordes a las medidas realizadas en la ciudad de Buenos Aires de la lluvia radioactiva proveniente de los ensayos nucleares y a lo esperado por el modelo de distribución de radionucleidos (propuesto por UNSCEAR) provenientes de la misma práctica. Por lo tanto, la presencia del ^{137}Cs en los suelos de la región de La Plata puede ser atribuida a los ensayos nucleares atmosféricos realizados

en el Hemisferio Sur, descartándose la presencia de otra fuente antropogénica de ^{137}Cs , al menos con los límites de detección aquí utilizados.

✓ Uniendo la información disponible de los inventarios en suelos de América del Sur se observó que en algunas regiones de Chile los valores resultaron mayores que los de Argentina y que el esperado por el modelo de UNSCEAR. Pudo observarse que la precipitación anual media y el inventario mostraron un comportamiento similar, por lo que mismo podría depender de la tasa precipitación anual media. Así, podría esperarse que la presencia de la Cordillera de Los Andes haya servido como pantalla de la lluvia radioactiva, proveniente de los ensayos de armas nucleares, para Argentina.

✓ Los inventarios obtenidos a partir de los ajustes de los perfiles de actividad utilizando los modelos ODCDE y ODCDFE resultaron acorde a los determinados experimentalmente.

La determinación de los perfiles de actividad junto con la caracterización de los suelos permitió conocer por primera vez datos de actividad en la región y su relación con distintas propiedades del suelo. Estos son los primeros pasos para el establecimiento de la línea de base radiológica de suelos de la provincia de Buenos Aires y las conclusiones desprendidas de este trabajo sirven como punto de partida para continuar con los estudios y determinar mapas de actividad de los distintos radionucleidos estudiados.

Los resultados de este trabajo muestran la necesidad de complementar los estudios aquí desarrollados con otros. Por ejemplo, para poder corroborar la hipótesis acerca de la correlación entre la variación de actividad del ^{226}Ra con la profundidad asociada con el contenido de carbonatos, se necesita la determinación de esta última variable del suelo. Asimismo, sería de mucho interés determinar la concentración de potasio total en el suelo y así estudiar si el ^{40}K se encuentra en las proporciones isotópicas naturales. Por otro lado, a fin de profundizar el estudio de la absorción de los radionucleidos en los distintos minerales constituyentes del suelo, sería muy interesante realizar experimentos de isotermas de adsorción de los mismos en los minerales naturales constituyentes de estos suelos. Sería de mucho interés establecer el contenido total de Fe en las muestras de suelo, para así normalizar las fracciones relativas determinadas por espectroscopía Mössbauer por ese factor, a fin de verificar las correlaciones entre la

actividad de los radionucleidos naturales y las fracciones relativas de algunos de los sitios de Fe.

Por otro lado, sería de mucho interés estudiar los perfiles de actividad del ^{90}Sr , también proveniente de los ensayos nucleares atmosféricos y correlacionar dichos perfiles con las propiedades de los suelos.

Asimismo, la observación de una posible dependencia entre la retención de algunos radionucleidos como función del contenido de illita evidencia la necesidad de estudiar suelos con porcentajes específicos de dicho mineral, ampliando el número mayor de perfiles de actividad de la región (suelos con concentraciones relativamente bajas y altas de arcillas e illita).

Por último, para establecer la línea de base radiológica de la región se requiere ampliar la zona de muestreo aquí abarcada. En el mismo sentido, dado que aún no se ha puesto en marcha el reactor nuclear Atucha II, sería de sumo interés realizar una caracterización radiológica de los suelos la región de emplazamiento de dicha central antes de que comience a operar, de manera que sirva como estado radiológico actual y sirva de comparación para los años venideros.

Anexo I: Resultados

A - Espectros gamma

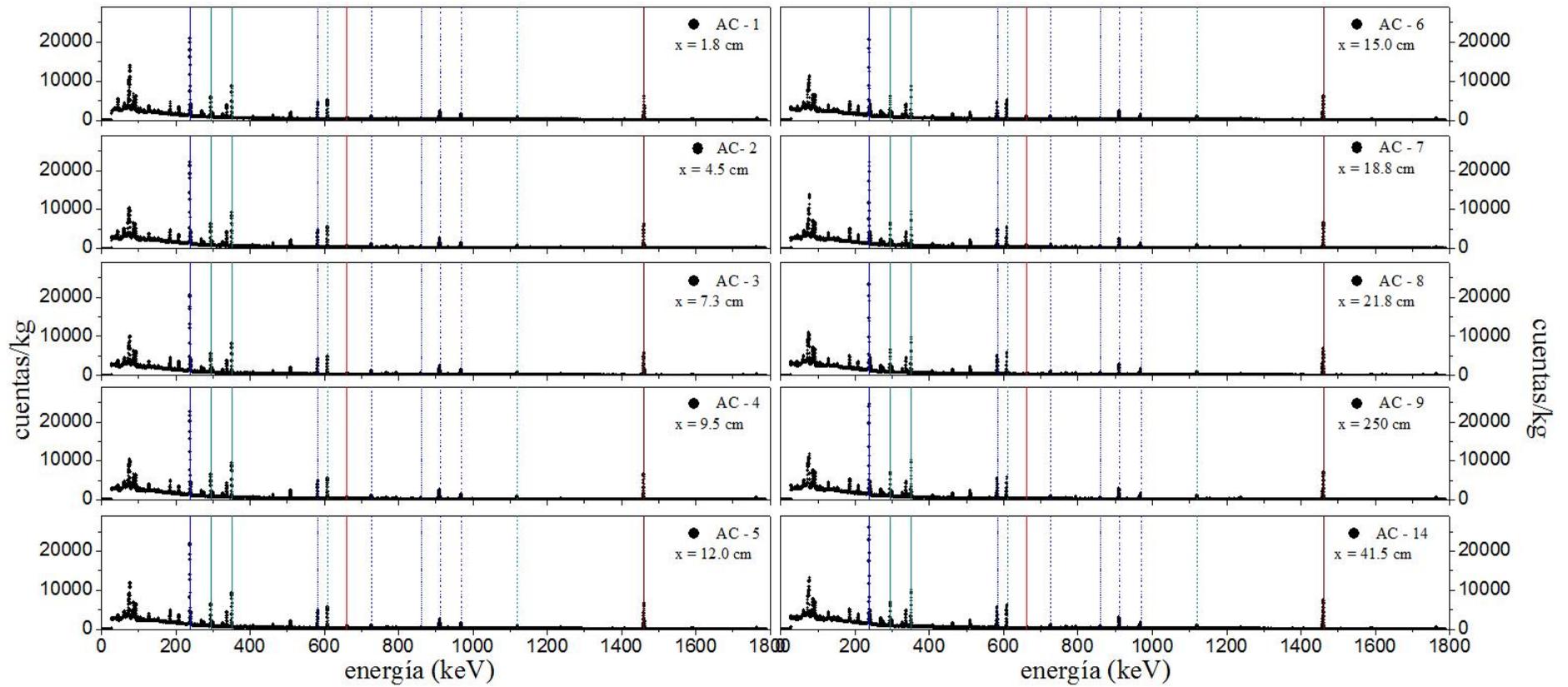


Figura 0.1: Espectros γ obtenidos para la zona de Arroyo Correa. Las líneas roja, marrón, verde y azul representan los fotopicos utilizados para la determinación de la actividad del ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra y de la cadena del ^{232}Th , respectivamente.

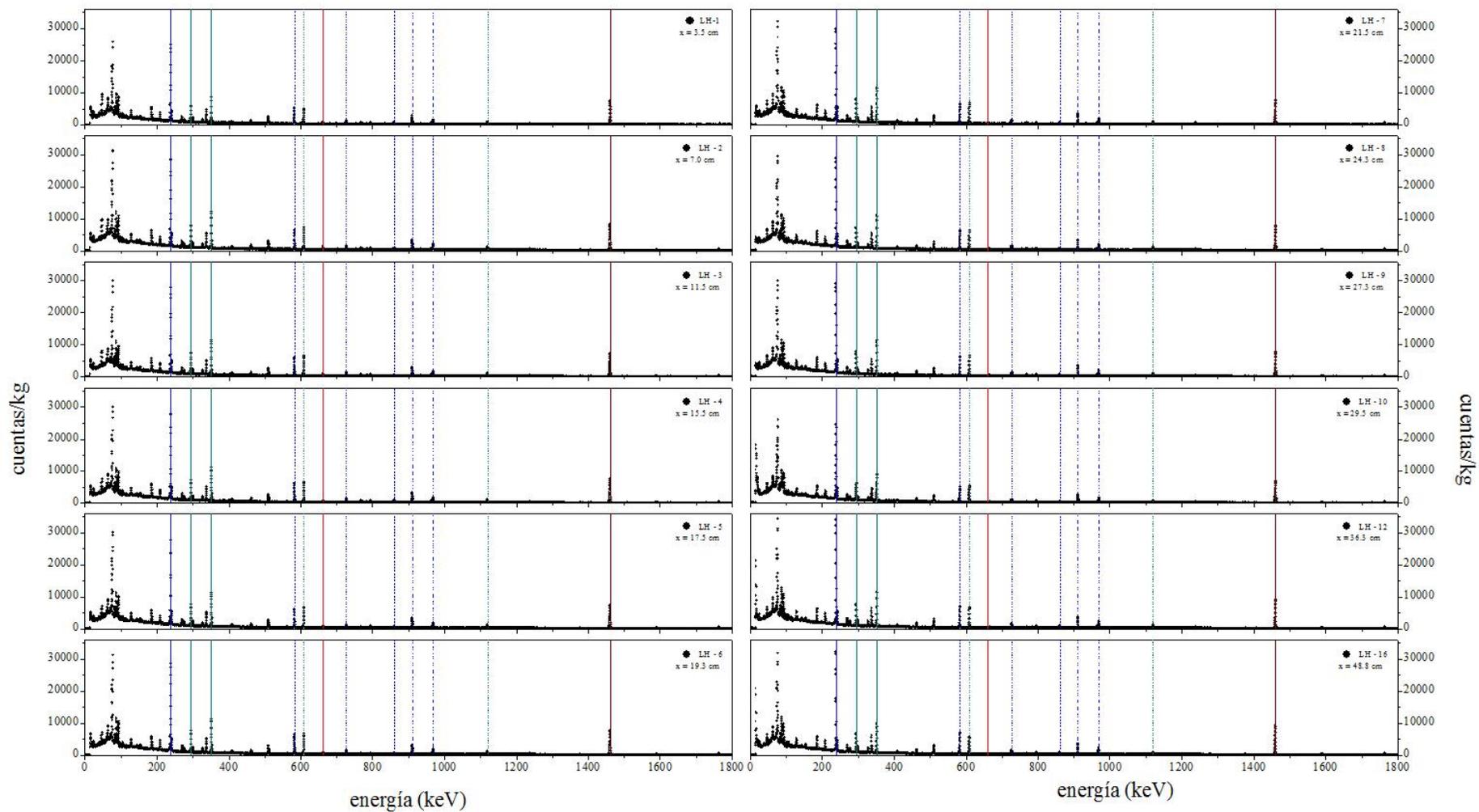


Figura 0.2: Espectros γ de las muestras recolectadas en la zona de Los Hornos. Las líneas roja, marrón, verde y azul muestran los fotopicos utilizados para la determinación de la actividad del ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra y de la cadena del ^{232}Th , respectivamente.

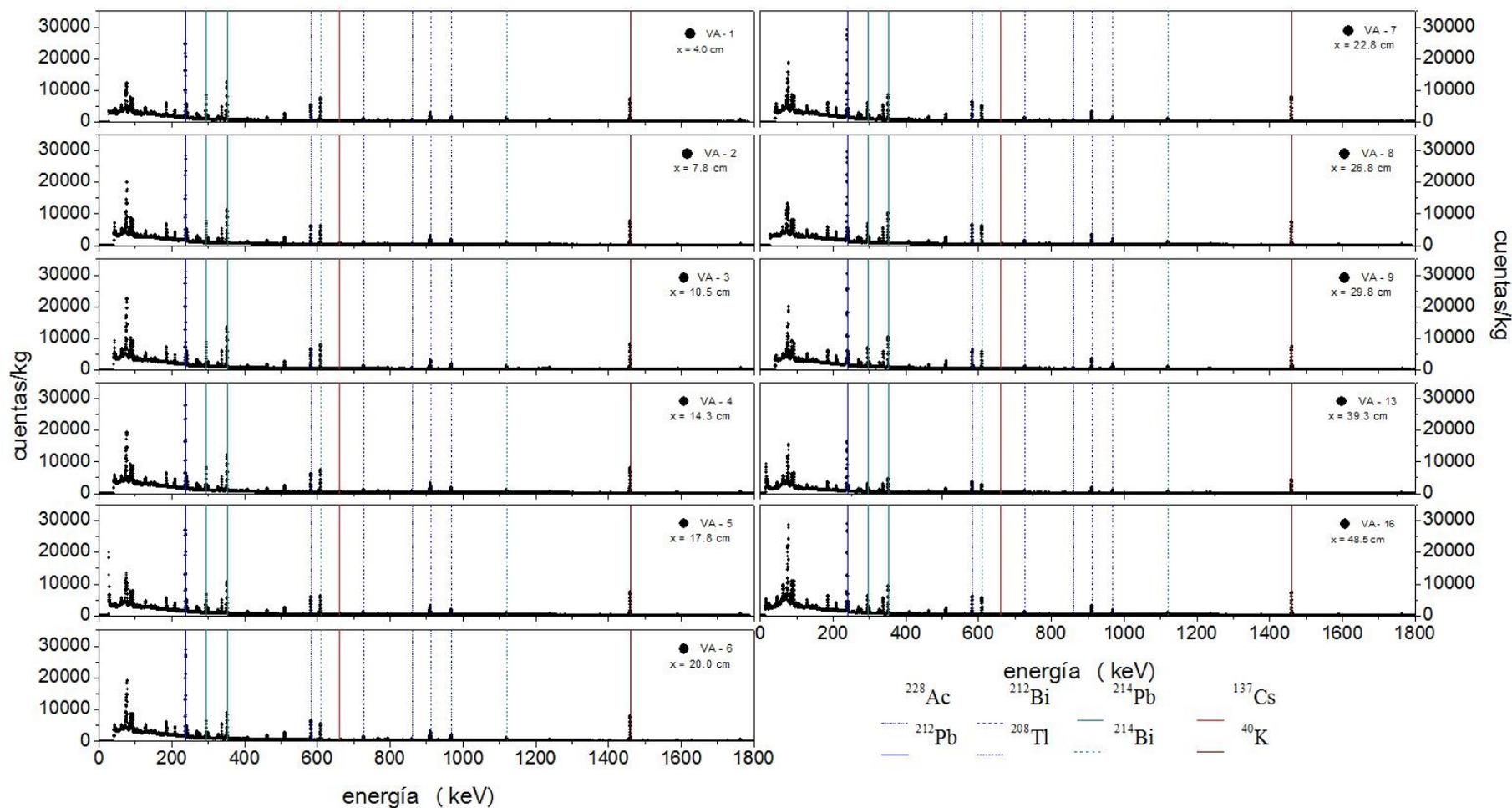


Figura 0.3: Espectros γ obtenidos para muestras de la zona de El Peligro. Las líneas azules representan fotopicos generados por el decaimiento de radionucleidos pertenecientes a la cadena del ^{232}Th , mientras que las verdes a los hijos del ^{226}Ra . La línea marrón y la roja representan las posiciones de los fotopicos asociados al ^{40}K y ^{137}Cs , respectivamente.

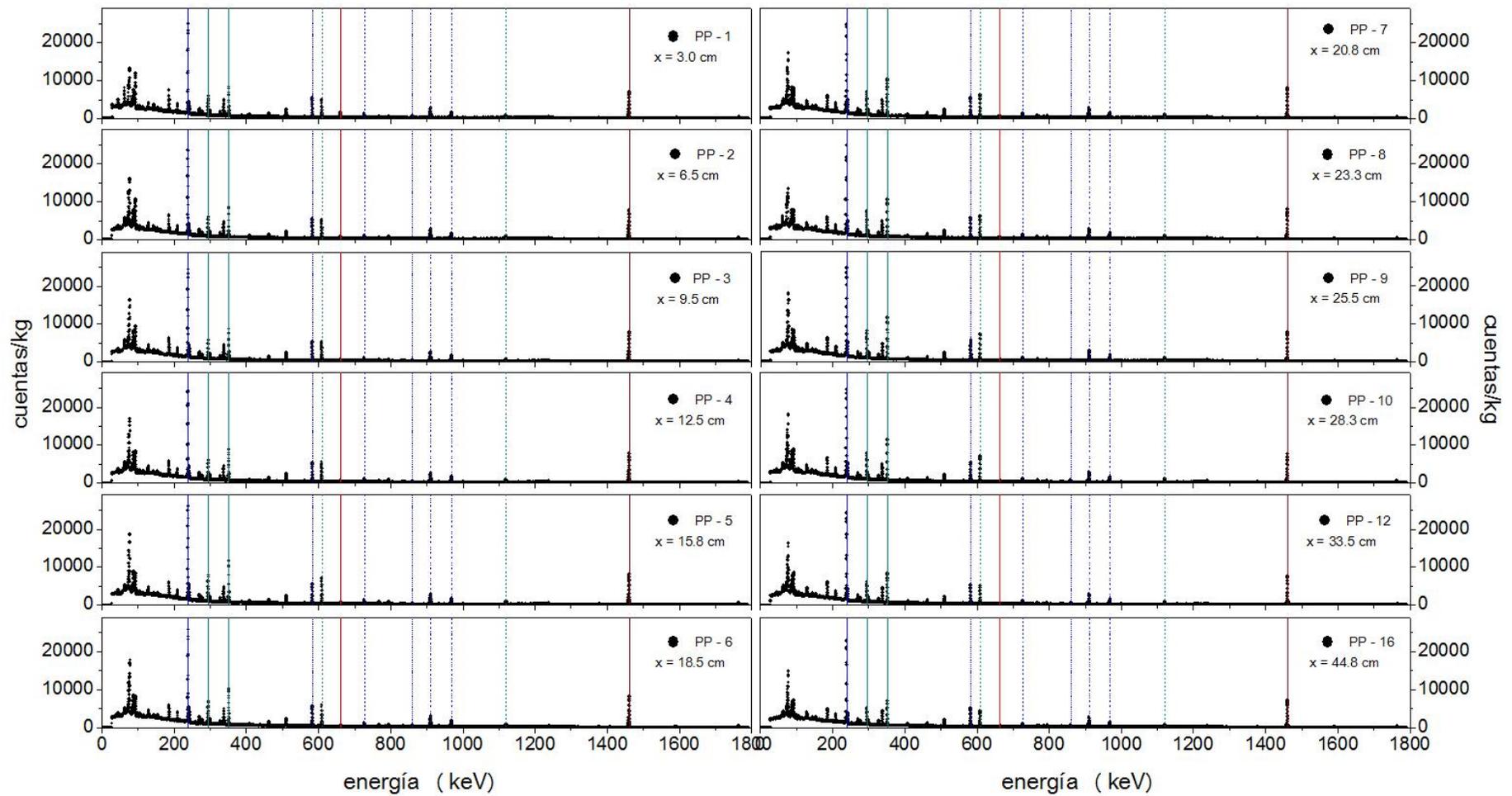


Figura 0.4: Espectros γ para muestras obtenidas de la zona del Parque Pereyra. Las líneas roja, marrón, verde y azul muestran los fotopicos utilizados para la determinación de la actividad del ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra y de la cadena del ^{232}Th , respectivamente.

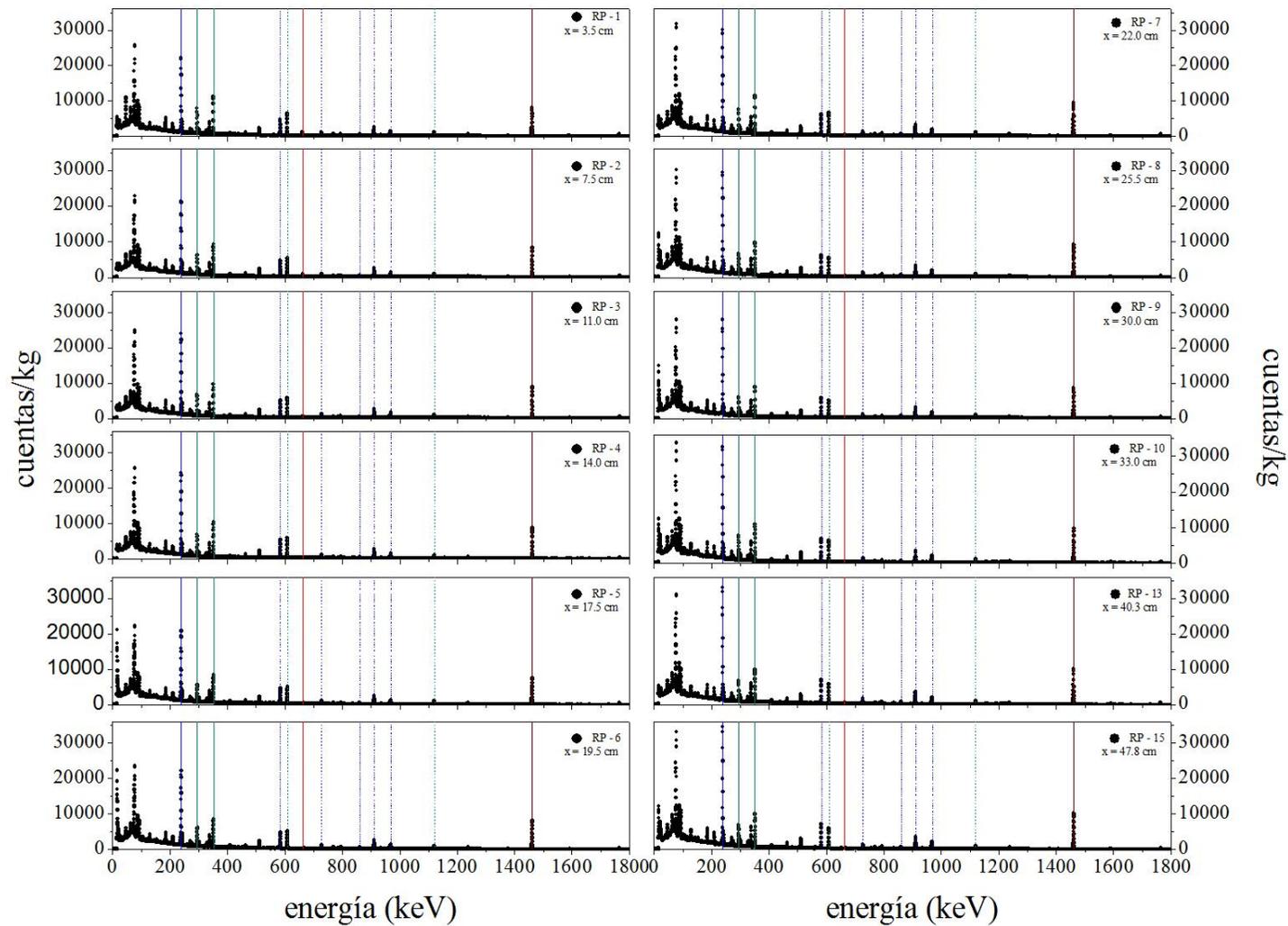


Figura 0.5: Espectros γ para muestras obtenidas de la zona de Radio Provincia. Las líneas roja, marrón, verde y azul muestran los fotopicos utilizados para la determinación de la actividad del ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra y de la cadena del ^{232}Th , respectivamente.

B – Ciclos de histéresis

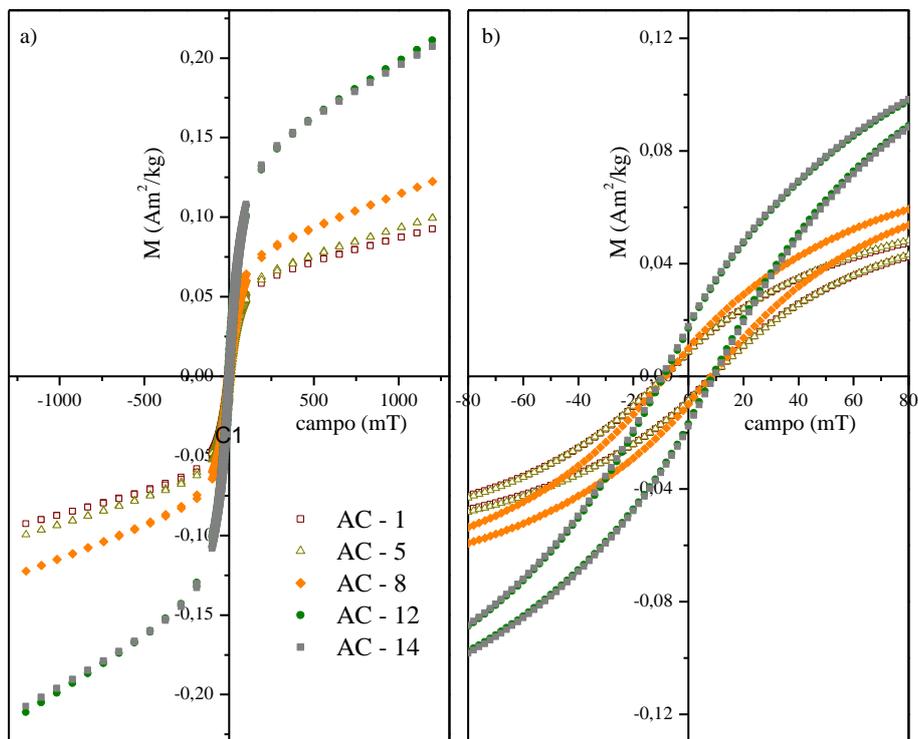


Figura 0.6: Zona de Arroyo Correa, a) ciclo de histéresis, b) parte central del ciclo de histéresis.

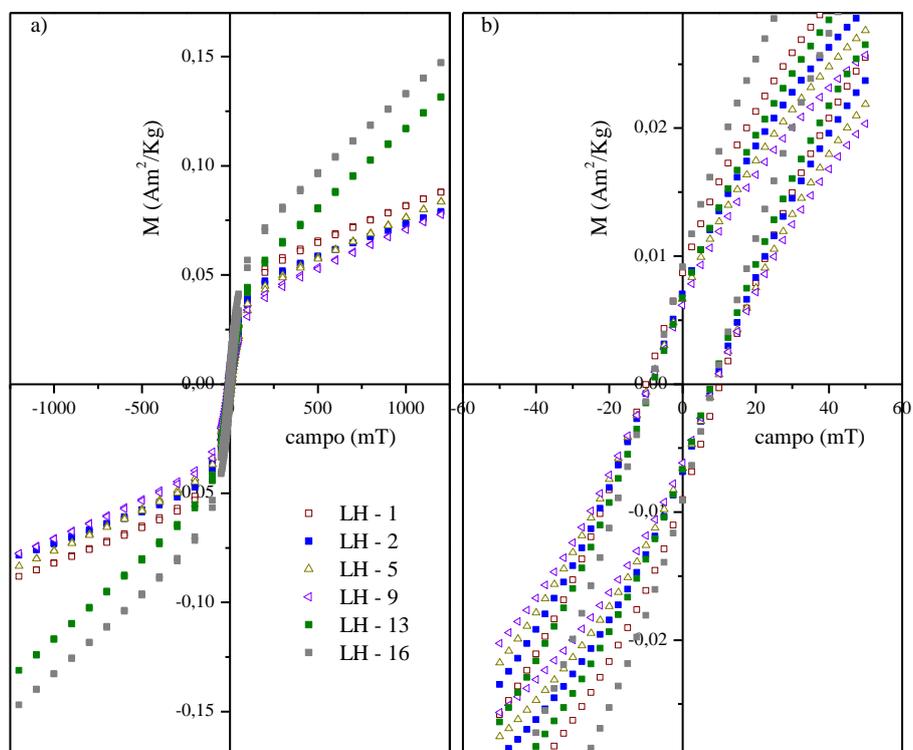


Figura 0.7: Zona de Los Hornos, a) ciclo de histéresis, b) parte central del ciclo de histéresis.

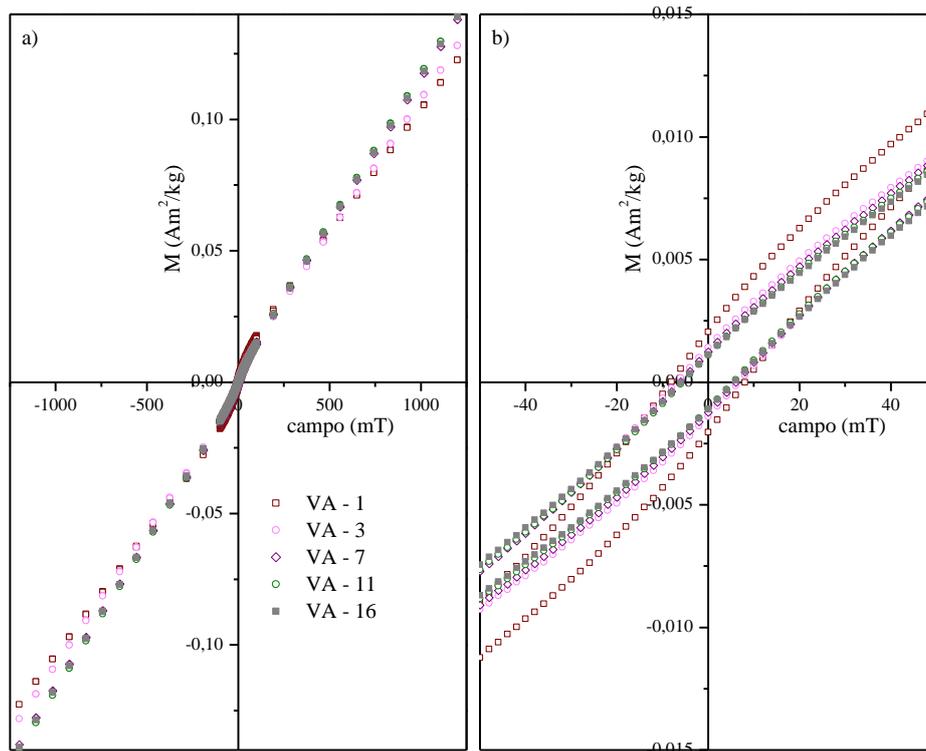


Figura 0.8: Zona de Villa Argiello, a) ciclo de histéresis, b) parte central del ciclo de histéresis.

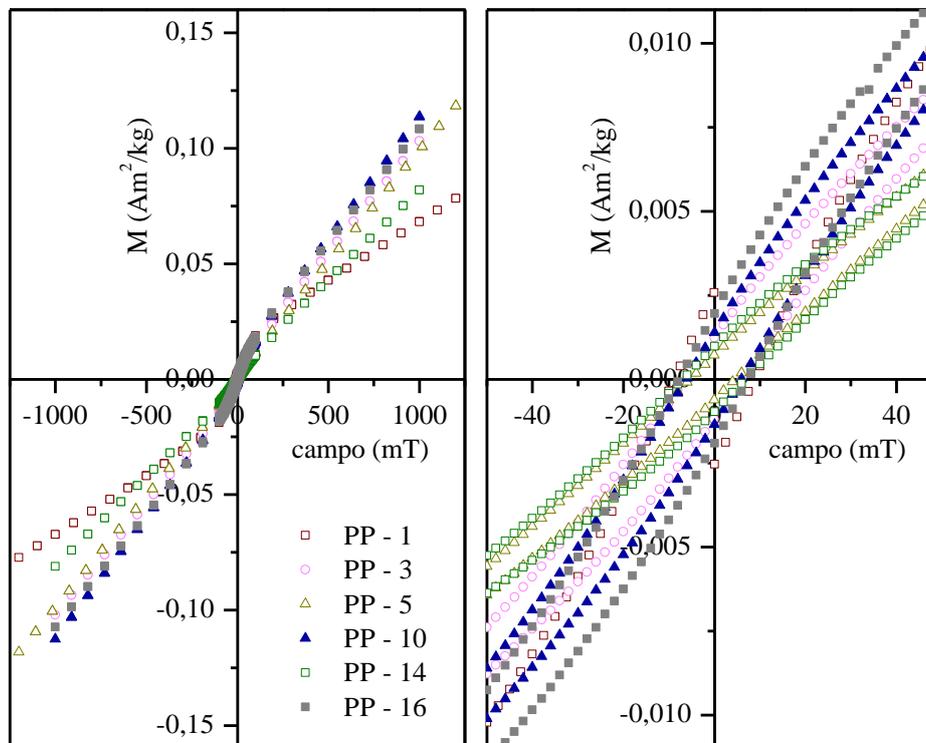


Figura 0.9: Zona del Parque Pereyra Iraola, a) ciclo de histéresis, b) parte central del ciclo de histéresis.

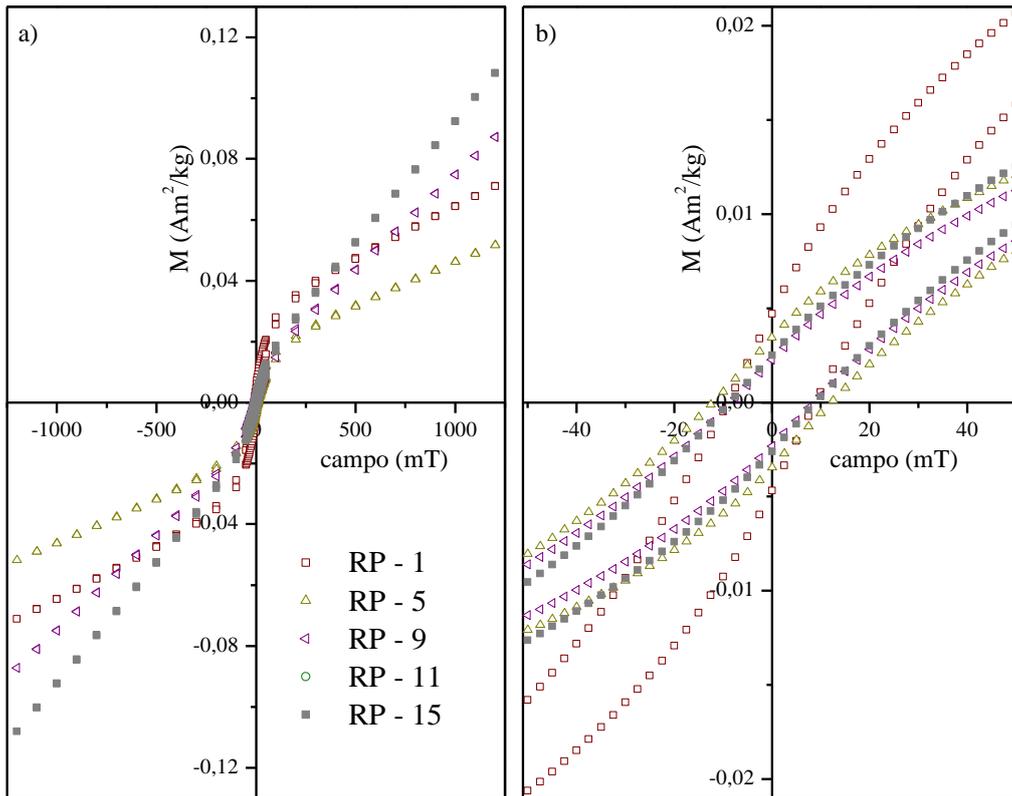


Figura 0.10: Zona de Radio Provincia a) ciclo de histéresis, b) parte central del ciclo de histéresis.

C – Espectros Mössbauer

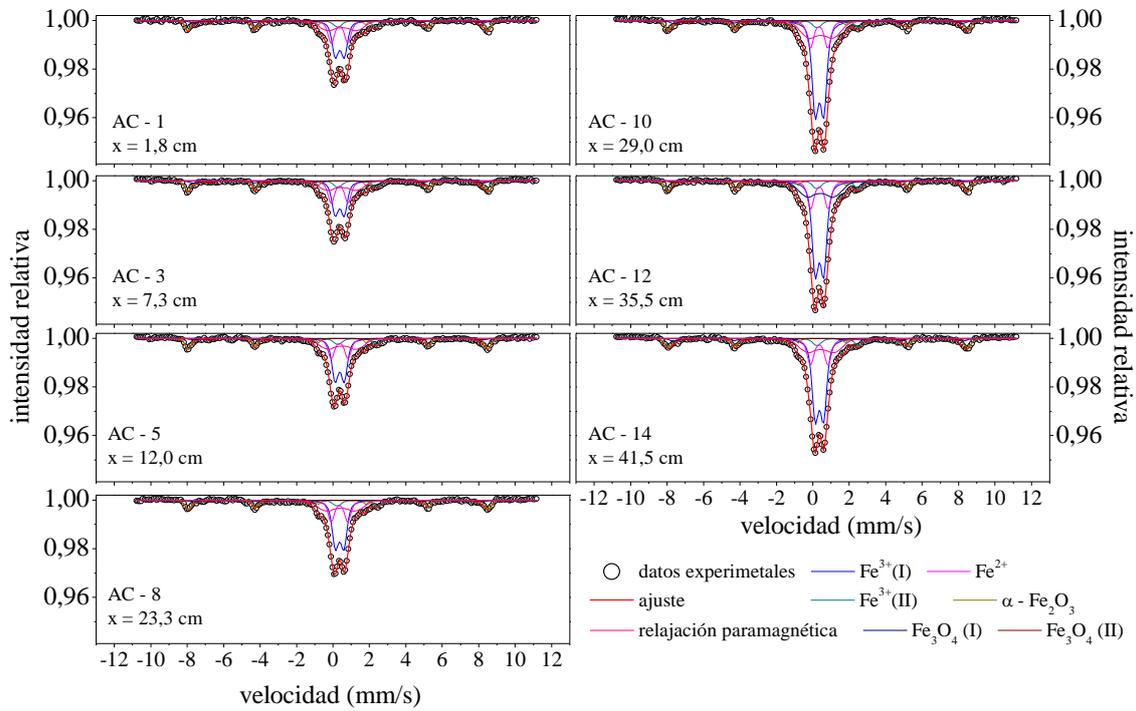


Figura 0.11: Espectros Mössbauer, junto con su ajuste, para la zona de Arroyo Correa.

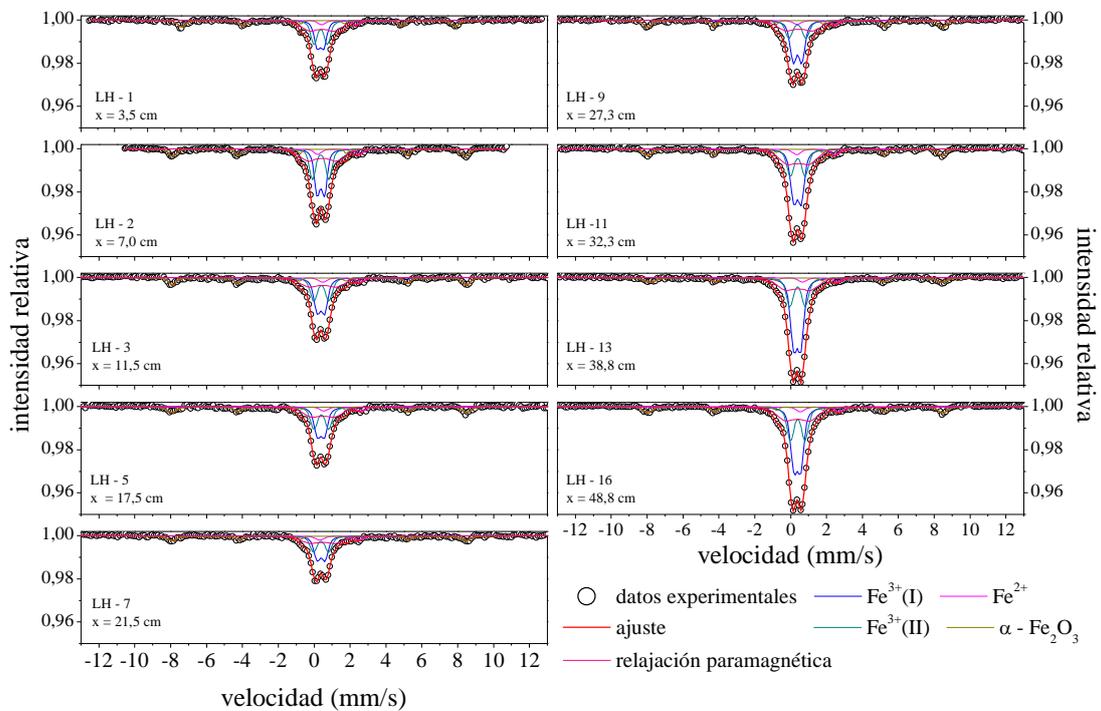


Figura 0.12: Espectros Mössbauer, junto con su ajuste, para la zona de Los Hornos.

Tabla 0.1. Parámetros Mössbauer determinados para la zona de Arroyo Correa. δ , Δ , ϵ y H representan el corrimiento isomérico, el desdoblamiento cuadrupolar, el corrimiento cuadrupolar y el campo magnético, mientras que FR, en porcentaje, es la fracción relativa de cada una de las fases.

Sitios paramagnéticos										
Código	x (cm)	Fe^{3+} (I)			Fe^{3+} (II)			Fe^{2+}		
		δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)	δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)	δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)
AC - 1	1,8	0,36 _{0,10} *	0,48 _{0,10} *	30±2	0,35 _{0,10} *	0,91 _{0,10} *	20±2	1,31 _{0,15} *	2,13 _{0,15} *	7±1
AC - 3	7,3	0,36 _{0,10} *	0,48 _{0,10} *	29±3	0,35 _{0,10} *	0,92 _{0,10} *	19±3	1,31 _{0,15} *	2,13 _{0,15} *	7±1
AC - 5	12,0	0,36 _{0,10} *	0,49 _{0,10} *	34±4	0,35 _{0,10} *	0,92 _{0,10} *	17±4	1,32 _{0,15} *	2,13 _{0,15} *	6±1
AC - 8	21,8	0,35 _{0,10} *	0,45 _{0,10} *	37±4	0,34 _{0,10} *	0,90 _{0,10} *	17±3	1,32 _{0,15} *	2,20 _{0,15} *	6±1
AC - 10	29,0	0,36 _{0,10} *	0,45 _{0,10} *	46±2	0,34 _{0,10} *	0,96 _{0,10} *	14±2	1,36 _{0,15} *	2,29 _{0,15} *	5±1
AC - 12	35,5	0,36 _{0,10} *	0,45 _{0,10} *	46±2	0,35 _{0,10} *	0,96 _{0,10} *	15±2	1,36 _{0,15} *	2,29 _{0,15} *	5±1
AC - 14	41,5	0,36 _{0,10} *	0,45 _{0,10} *	44±1	0,34 _{0,10} *	0,96 _{0,10} *	16±1	1,36 _{0,15} *	2,29 _{0,15} *	5±1
Sitios magnéticos										
Código	x (cm)	$\alpha - \text{Fe}_2\text{O}_3$				Fe_3O_4 FR _{tot} (%)	Relajación paramagnética			
		δ (mm/s)	ϵ (mm/s)	H (T)	FR (%)		δ (mm/s)	H (T)	FR (%)	
AC - 1	1,8	0,38±0,02	-0,11±0,02	51,1 _{0,5}	16±2	7±4	0,49 _{0,15} *	6,3 _{1,4} *	20±2	
AC - 3	7,3	0,40±0,01	-0,11±0,01	51,1 _{0,5}	18±2	9±3	0,47 _{0,15} *	6,3 _{1,4} *	19±2	
AC - 5	12,0	0,39±0,01	-0,11±0,01	51,0 _{0,6}	17±2	6±3	0,48 _{0,15} *	6,3 _{1,4} *	21±2	
AC - 8	21,8	0,39±0,02	-0,10±0,02	51,0 _{0,6}	15±2	5±3	0,42 _{0,15} *	6,5 _{1,4} *	18±2	
AC - 10	29,0	0,38±0,02	-0,11±0,02	51,0 _{0,6}	10±2	6±2	0,42 _{0,15} *	5,5 _{1,7} *	20±2	
AC - 12	35,5	0,38±0,02	-0,11±0,02	50,9 _{0,6}	11±1	4±2	0,40 _{0,15} *	6,0 _{1,7} *	20±2	
AC - 14	41,5	0,38*	-0,11±0,02	50,9 _{0,8}	11±1	5±2	0,43 _{0,15} *	6,0 _{1,7} *	19±1	

Tabla 0.2: Parámetros Mössbauer obtenidos de los ajustes de las muestras analizadas para la zona de Los Hornos. δ , Δ , y H representan el corrimiento isomérico, el desdoblamiento cuadrupolar, el corrimiento cuadrupolar y el campo magnético, mientras que FR, en porcentaje, es la fracción relativa de cada una de las fases.

Sitios paramagnéticos										
Código	x (cm)	Fe ³⁺ (I)			Fe ³⁺ (II)			Fe ²⁺		
		δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)	δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)	Δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)
LH - 1	3,5	0,36 _{0,10} *	0,40 _{0,10} *	26±9	0,38 _{0,10} *	0,80 _{0,15} *	26±8	1,47 _{0,15} *	2,06 _{0,15} *	5±2
LH - 2	7,0	0,36 _{0,10} *	0,41 _{0,10} *	32±2	0,35 _{0,10} *	0,91 _{0,15} *	24±2	1,33 _{0,15} *	2,30 _{0,15} *	5±1
LH - 3	11,5	0,37 _{0,10} *	0,42 _{0,10} *	32±7	0,39 _{0,10} *	0,85 _{0,15} *	24±6	1,50 _{0,15} *	2,04 _{0,15} *	6±2
LH - 5	17,5	0,35 _{0,10} *	0,40 _{0,10} *	29±9	0,39 _{0,10} *	0,82 _{0,15} *	25±7	1,56 _{0,15} *	2,07 _{0,15} *	5±2
LH - 7	21,5	0,37 _{0,10} *	0,44 _{0,10} *	30±4	0,37 _{0,10} *	0,85 _{0,15} *	22±5	1,39 _{0,15} *	2,18 _{0,15} *	7±2
LH - 9	27,3	0,38 _{0,10} *	0,47 _{0,10} *	37±4	0,37 _{0,10} *	0,95 _{0,15} *	18±4	1,41 _{0,15} *	2,12 _{0,15} *	5±1
LH - 11	32,8	0,37 _{0,10} *	0,42 _{0,10} *	37±6	0,38 _{0,10} *	0,83 _{0,15} *	21±5	1,39 _{0,15} *	2,12 _{0,15} *	5±1
LH - 13	38,8	0,35 _{0,10} *	0,39 _{0,10} *	45±6	0,37 _{0,10} *	0,86 _{0,15} *	21±6	1,62 _{0,15} *	1,94 _{0,15} *	4±1
LH - 16	48,8	0,36 _{0,10} *	0,38 _{0,10} *	40±4	0,38 _{0,10} *	0,81 _{0,15} *	24±3	1,61 _{0,15} *	2,16 _{0,15} *	4±1

Sitios magnéticos								
Código	x (cm)	$\alpha - \text{Fe}_2\text{O}_3$				Relajación paramagnética		
		δ (mm/s)	ε (mm/s)	H (T)	FR (%)	δ (mm/s)	H (T)	FR (%)
LH - 1	3,5	0,37±0,03	-0,12± 0,03	50,9 _{1,1}	17±3	0,46 _{0,15} *	6,2 _{2,0} *	26±5
LH - 2	7,0	0,38±0,02	-0,11± 0,02	51,6 _{1,1}	15±2	0,44 _{0,15} *	6,5 _{2,0} *	24±2
LH - 3	11,5	0,38±0,08	-0,09± 0,03	50,9 _{0,7}	17±3	0,45 _{0,15} *	6,4 _{2,0} *	22±5
LH - 5	17,5	0,38±0,04	-0,10± 0,04	50,9 _{1,2}	17±4	0,47 _{0,15} *	5,6 _{2,0} *	25±7
LH - 7	21,5	0,41±0,05	-0,15± 0,05	50,7 _{1,4}	18±3	0,47 _{0,15} *	6,0 _{2,0} *	23±5
LH - 9	27,3	0,38±0,02	-0,11± 0,02	50,0 _{1,0}	17±2	0,47 _{0,15} *	6,2 _{2,0} *	24±3
LH - 11	32,8	0,36±0,03	-0,12± 0,03	50,8 _{1,0}	12±2	0,41 _{0,15} *	5,3 _{2,0} *	25±5
LH - 13	38,8	0,39±0,04	-0,09± 0,04	50,3 _{1,6}	10±2	0,40 _{0,15} *	5,8 _{2,0} *	20±3
LH - 16	48,8	0,38±0,03	-0,12± 0,03	51,0 _{1,1}	11±2	0,39 _{0,15} *	5,8 _{2,0} *	22±3

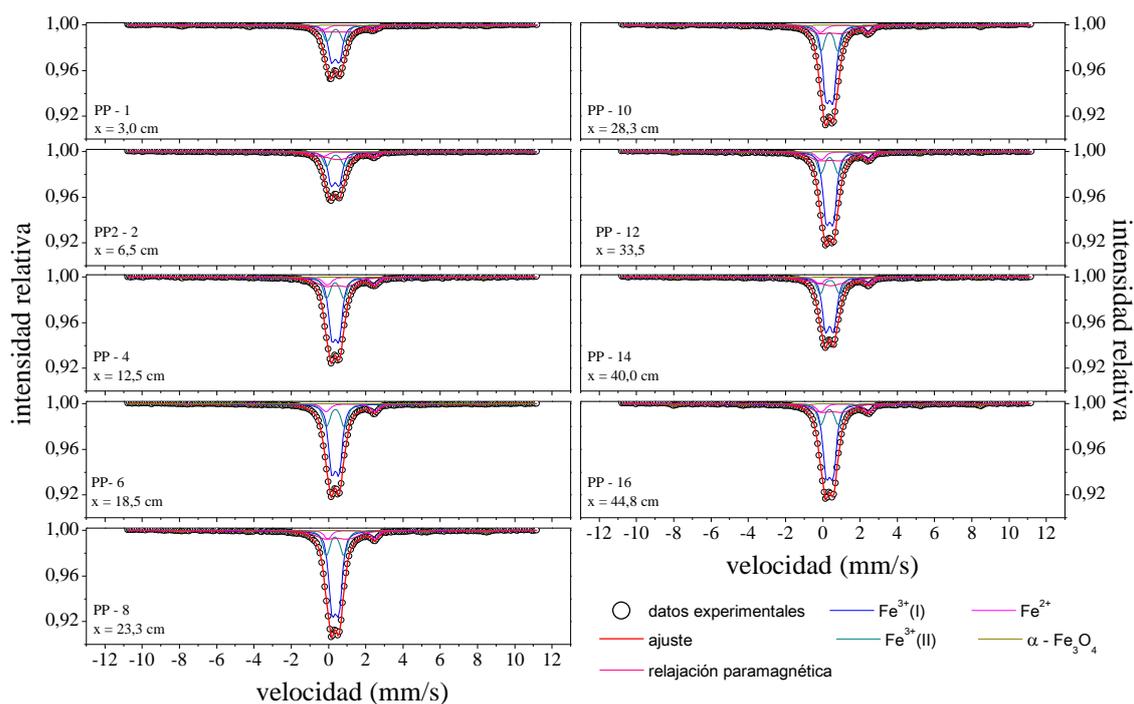


Figura 0.13: Espectros Mössbauer, junto con su ajuste, para la zona del Parque Pereyra Iraola.

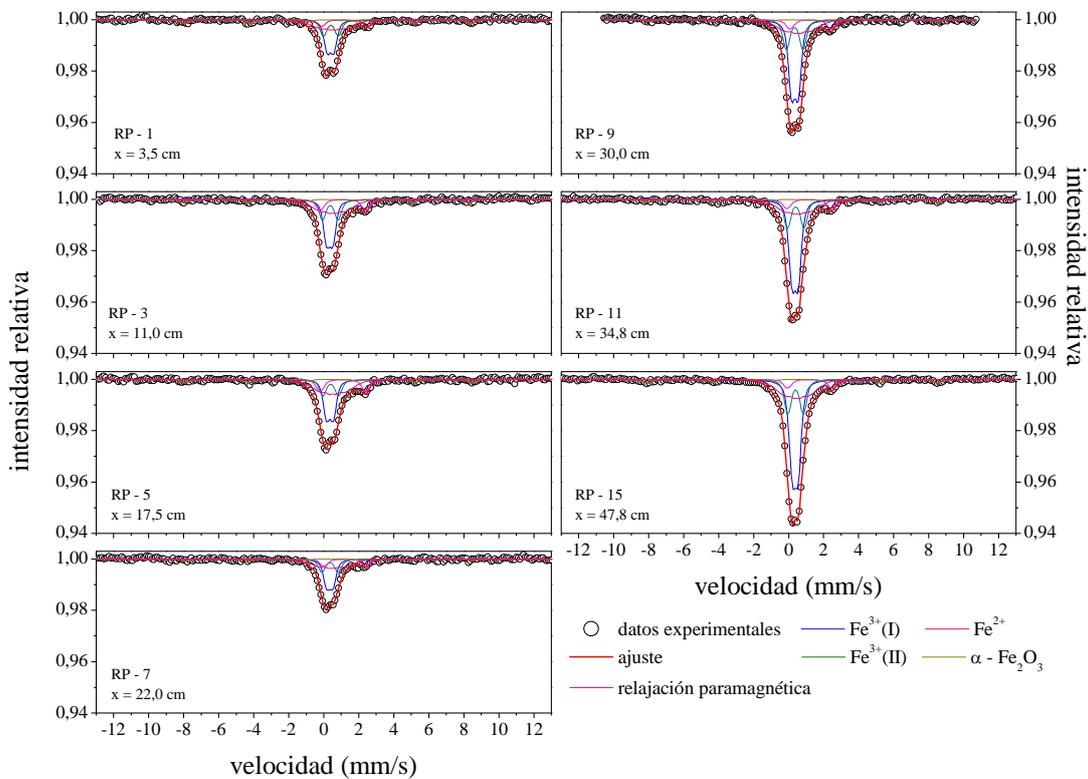


Figura 0.14: Espectros Mössbauer, junto con su ajuste, para la zona Radio Provincia.

Tabla 0.3: Parámetros Mössbauer para la zona del Parque Pereyra. δ , Δ , ε y H representan el corrimiento isomérico, el desdoblamiento cuadrupolar, el corrimiento cuadrupolar y el campo magnético, mientras que FR, en porcentaje, es la fracción relativa de cada una de las fases.

Sitios paramagnéticos										
Código	x (cm)	Fe ³⁺ (I)			Fe ³⁺ (II)			Fe ²⁺		
		δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)	δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)	δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)
PP - 1	3,0	0,36 _{0,10} *	0,42 _{0,10} *	44±2	0,37 _{0,10} *	0,94 _{0,15} *	22±2	1,09 _{0,15} *	2,69 _{0,15} *	7±1
PP - 2	6,5	0,36 _{0,10} *	0,43 _{0,10} *	44±1	0,38 _{0,10} *	1,00 _{0,15} *	22±1	1,11 _{0,15} *	2,71 _{0,15} *	8±1
PP - 4	12,5	0,36 _{0,10} *	0,39 _{0,10} *	51±2	0,35 _{0,10} *	0,93 _{0,15} *	20±1	1,19 _{0,15} *	2,55 _{0,15} *	9±1
PP - 6	18,5	0,36 _{0,10} *	0,40 _{0,10} *	52±1	0,36 _{0,10} *	0,97 _{0,15} *	20±1	1,17 _{0,15} *	2,63 _{0,15} *	8±1
PP - 8	23,3	0,36 _{0,10} *	0,37 _{0,10} *	55±1	0,34 _{0,10} *	0,94 _{0,15} *	20±1	1,21 _{0,10} *	2,54 _{0,15} *	7±1
PP - 10	28,3	0,36 _{0,10} *	0,38 _{0,10} *	53±1	0,35 _{0,10} *	0,91 _{0,15} *	21±1	1,17 _{0,15} *	2,59 _{0,15} *	7±1
PP - 12	33,5	0,36 _{0,10} *	0,38 _{0,10} *	53±1	0,35 _{0,10} *	0,94 _{0,15} *	19±1	1,17 _{0,15} *	2,57 _{0,15} *	8±1
PP - 14	40,0	0,36 _{0,10} *	0,43* _{0,10} *	53±1	0,37 _{0,10} *	1,05 _{0,15} *	18±1	1,14 _{0,15} *	2,65 _{0,15} *	9±1
PP - 16	44,8	0,36 _{0,10} *	0,38 _{0,10} *	54±1	0,35 _{0,10} *	0,93 _{0,15} *	18±1	1,17 _{0,15} *	2,57 _{0,15} *	8±1

Sitios magnéticos								
Código	x (cm)	$\alpha - \text{Fe}_2\text{O}_3$				Relajación paramagnética		
		δ (mm/s)	ε (mm/s)	H (T)	FR (%)	δ (mm/s)	H (T)	FR (%)
PP - 1	3,0	0,41±0,04	-0,10±0,04	50,8 _{0,5}	4±1	0,50 _{0,15} *	6 ₄	23±3
PP - 2	6,5	0,38*	-0,10*	51,0 _{0,1}	1±1	0,43 _{0,15} *	6* ₄ *	25±2
PP - 4	12,5	0,38*	-0,10*	50,2 _{0,1}	1±1	0,42 _{0,15} *	6* ₄ *	20±1
PP - 6	18,5	0,37±0,06	-0,10*	48,7 _{0,5}	1±1	0,39 _{0,15} *	6* ₄ *	18±1
PP - 8	23,3	0,37±0,05	-0,10±0,05	50,7 _{0,9}	2±1	0,44 _{0,15} *	6* ₄ *	16±1
PP - 10	28,3	0,39±0,04	-0,10*	51,1 _{0,6}	2±1	0,42 _{0,15} *	6* ₄ *	16±1
PP - 12	33,5	0,37±0,06	-0,11±0,06	51,1 _{0,4}	2±1	0,41 _{0,15} *	6* ₄ *	18±1
PP - 14	40,0	0,38*	-0,10*	50,4 _{0,5}	1±1	0,44 _{0,15} *	6* ₄ *	19±2
PP - 16	44,8	0,38±0,03	-0,12±0,03	50,9 _{0,4}	3±1	0,44 _{0,15} *	6* ₄ *	17±1

Tabla 0.4: Parámetros hiperfinos obtenido del ajuste de los espectros Mössbauer de la zona de Radio provincia. δ , Δ , ϵ y H representan el corrimiento isomérico, el desdoblamiento cuadrupolar, el corrimiento cuadrupolar y el campo magnético, mientras que FR, en porcentaje, es la fracción relativa de cada una de las fases.

Sitios paramagnéticos										
Código	x (cm)	Fe ³⁺ (I)			Fe ³⁺ (II)			Fe ²⁺		
		δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)	δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)	δ (mm/s)	Δ (mm/s)	FR (%)
RP - 1	3,5	0,37 _{0,10*}	0,38 _{0,10*}	34±4	0,40 _{0,10*}	0,85* _{0,15*}	19±4	1,17 _{0,15*}	2,62 _{0,15*}	9±2
RP - 3	11,0	0,34 _{0,10*}	0,37 _{0,10*}	35±3	0,36 _{0,10*}	0,90* _{0,15*}	19±3	1,09 _{0,15*}	2,59 _{0,15*}	11±2
RP - 5	17,5	0,35 _{0,10*}	0,40 _{0,10*}	33±3	0,39 _{0,10*}	0,90* _{0,15*}	16±3	1,09 _{0,15*}	2,60* _{0,15*}	13±2
RP - 7	22,0	0,34 _{0,10*}	0,37 _{0,10*}	35±4	0,35* _{0,10*}	0,94 _{0,15*}	19±3	1,20* _{0,15*}	2,38 _{0,15*}	12±3
RP - 9	30,0	0,35 _{0,10*}	0,38 _{0,10*}	47±3	0,34 _{0,10*}	0,95* _{0,15*}	21±3	1,25 _{0,15*}	2,37 _{0,15*}	8±2
RP - 11	34,8	0,36 _{0,10*}	0,36 _{0,10*}	49±3	0,39 _{0,10*}	0,95 _{0,15*}	19±2	1,16 _{0,15*}	2,53 _{0,15*}	7±1
RP - 15	47,8	0,37 _{0,10*}	0,34 _{0,10*}	47±2	0,39 _{0,10*}	0,89 _{0,15*}	20±2	1,19 _{0,15*}	2,54 _{0,15*}	6±1

Sitios magnéticos								
Código	x (cm)	$\alpha - \text{Fe}_2\text{O}_3$				Relajación paramagnética		
		δ (mm/s)	ϵ (mm/s)	H (T)	FR (%)	δ (mm/s)	H (T)	FR (%)
RP - 1	3,5	0,39±0,06	-0,14±0,06	50,6 _{1,1}	11±3	0,49* _{0,05*}	6* _{3*}	27±4
RP - 3	11,0	0,31±0,08	-0,14±0,08	50,2 _{1,2}	7±2	0,50 _{0,05*}	6* _{3*}	28±3
RP - 5	17,5	0,39±0,07	-0,12±0,07	50,9 _{0,9}	8±2	0,50* _{0,05*}	6* _{3*}	30±3
RP - 7	22,0	0,38*	-0,1*	50,9* _{0,9*}	5±3	0,45 _{0,05*}	6* _{3*}	29±5
RP - 9	30,0	0,38*	-0,1*	50,8 _{1*}	3±2	0,51 _{0,05*}	6* _{3*}	21±2
RP - 11	34,8	0,38±0,08	-0,1*	51,2 _{0,9}	4±2	0,49 _{0,05*}	6* _{3*}	21±3
RP - 15	47,8	0,35±0,05	-0,12±0,05	51,4 _{0,9}	5±1	0,45 _{0,05*}	6* _{3*}	23±2

D – Difractogramas

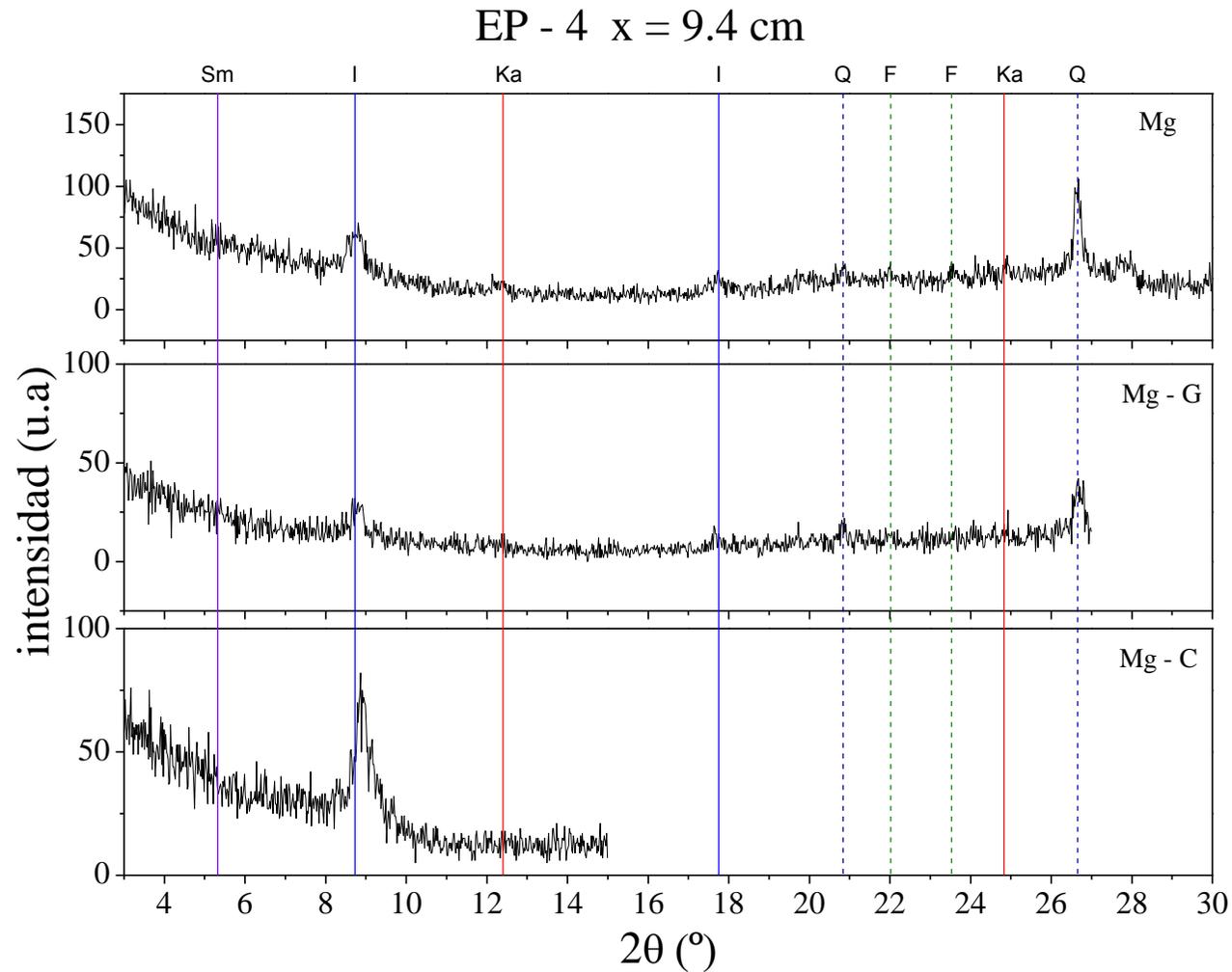


Figura 0.15: Difractogramas para la muestra EP - 4. Mg, Mg-G y Mg-C indican que la muestra fue homoionizada, homoionizada y glicolada y homoionizada y calcinada. Sm, I, Ka, Q y F representan esmectita, illita, caolinita, cuarzo y feldespato, respectivamente.

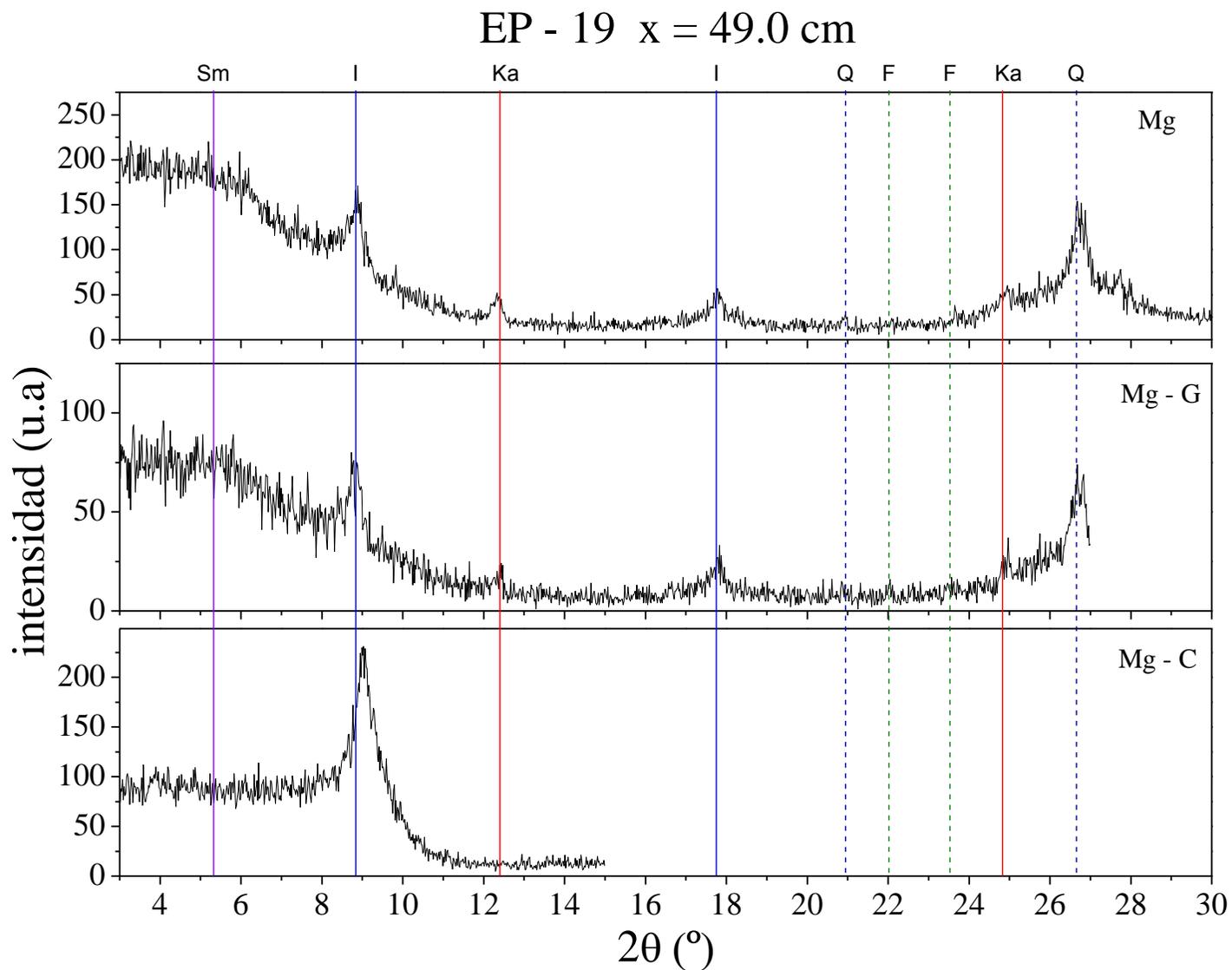


Figura 0.16: Difractogramas para la muestra EP - 19. Mg, Mg-G y Mg-C indican que la muestra fue homoionizada, homoionizada y glicolada y homoionizada y calcinada. Sm, I, Ka, Q y F representan esmectita, illita, caolinita, cuarzo y feldespato, respectivamente.

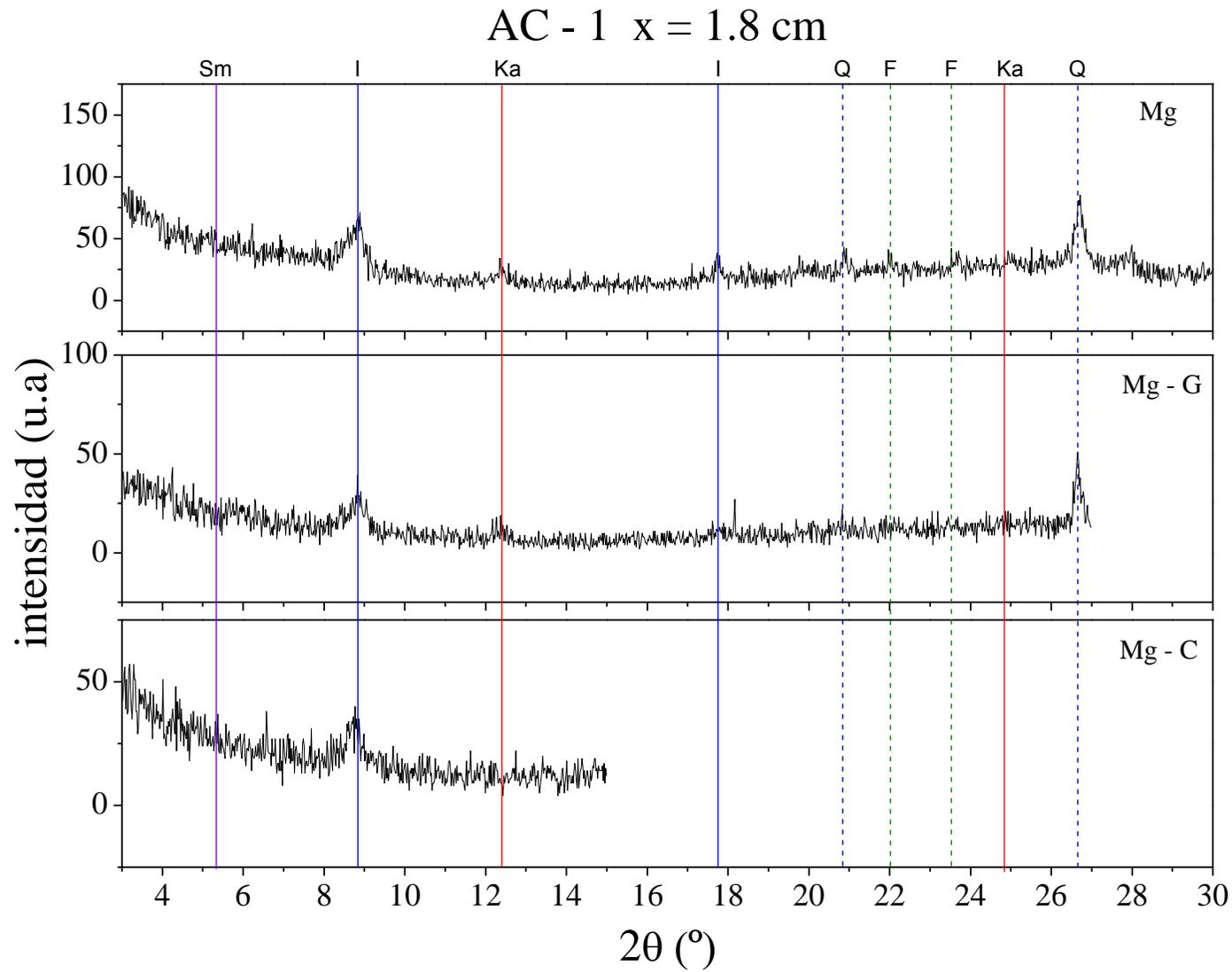


Figura 0.17: Difractogramas correspondientes a la muestra superficial de la zona de Arroyo Correa. En todos los casos en catión saturante fue Mg, G y C indican que las muestras fueron glicoladas y calcinadas, respectivamente. Las líneas indican la posición esperada de los principales minerales presentes en suelos.

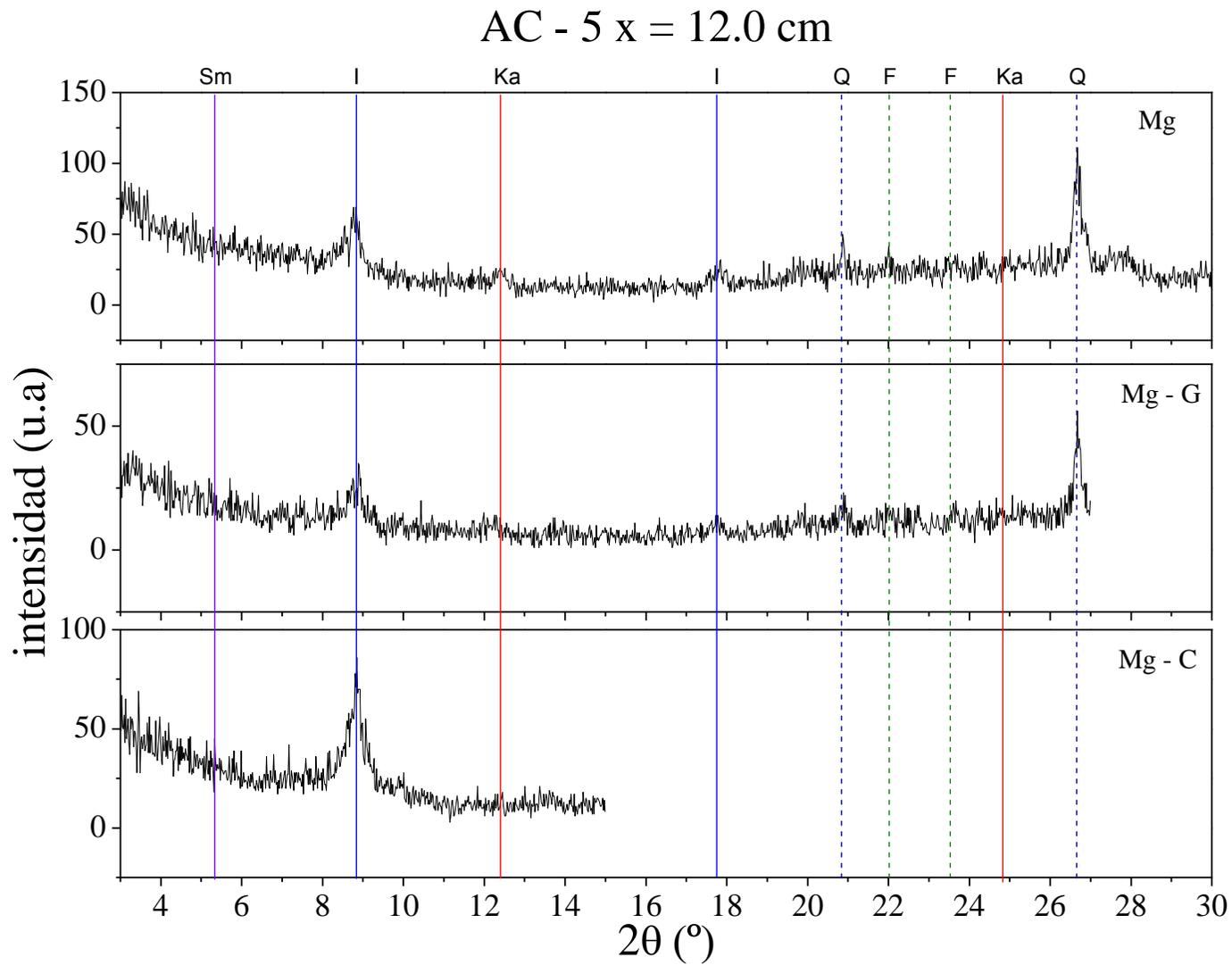


Figura 0.18: Difractogramas obtenidos para la muestra con máxima concentración de ^{137}Cs , AC - 5. Mg indica un pre-tratamiento de las muestras con magnesio, mientras que G y C indican que las muestras fueron glicoladas y calcinadas, respectivamente. Las líneas indican la posición esperada de los picos debido a la presencia de esmectitas (Sm), illita (I), caolinita (Ka), cuarzo (Q) y feldespato (F).

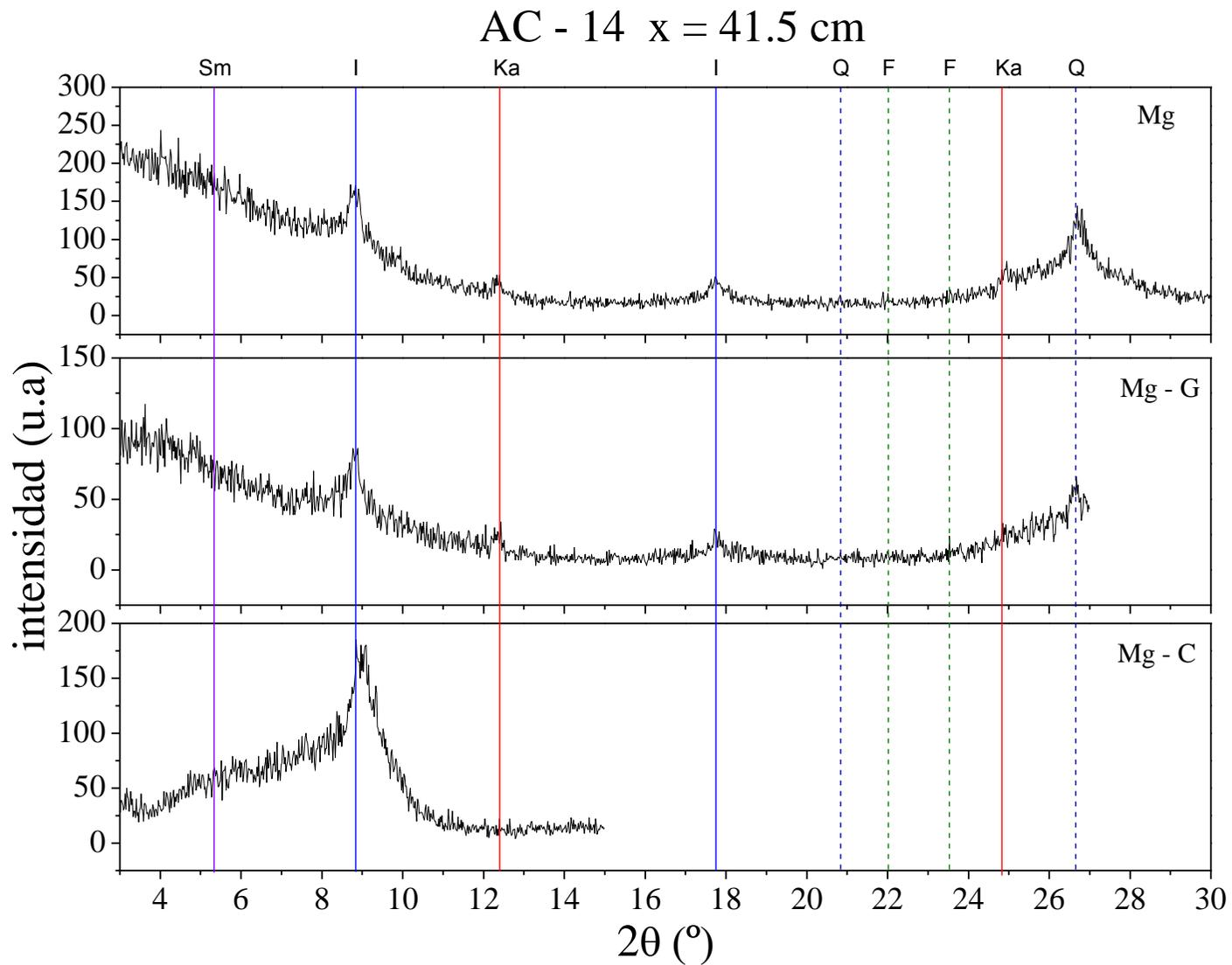


Figura 0.19: Difractogramas para la muestra AC – 14. Mg, Mg-G y Mg-C indican que la muestra fue homoionizada, homoionizada y glicolada y homoionizada y calcinada, respectivamente. Sm, I, Ka, Q y F representan esmectita, illita, caolinita, cuarzo y feldespato, respectivamente.

LH - 1 x = 3.5 cm

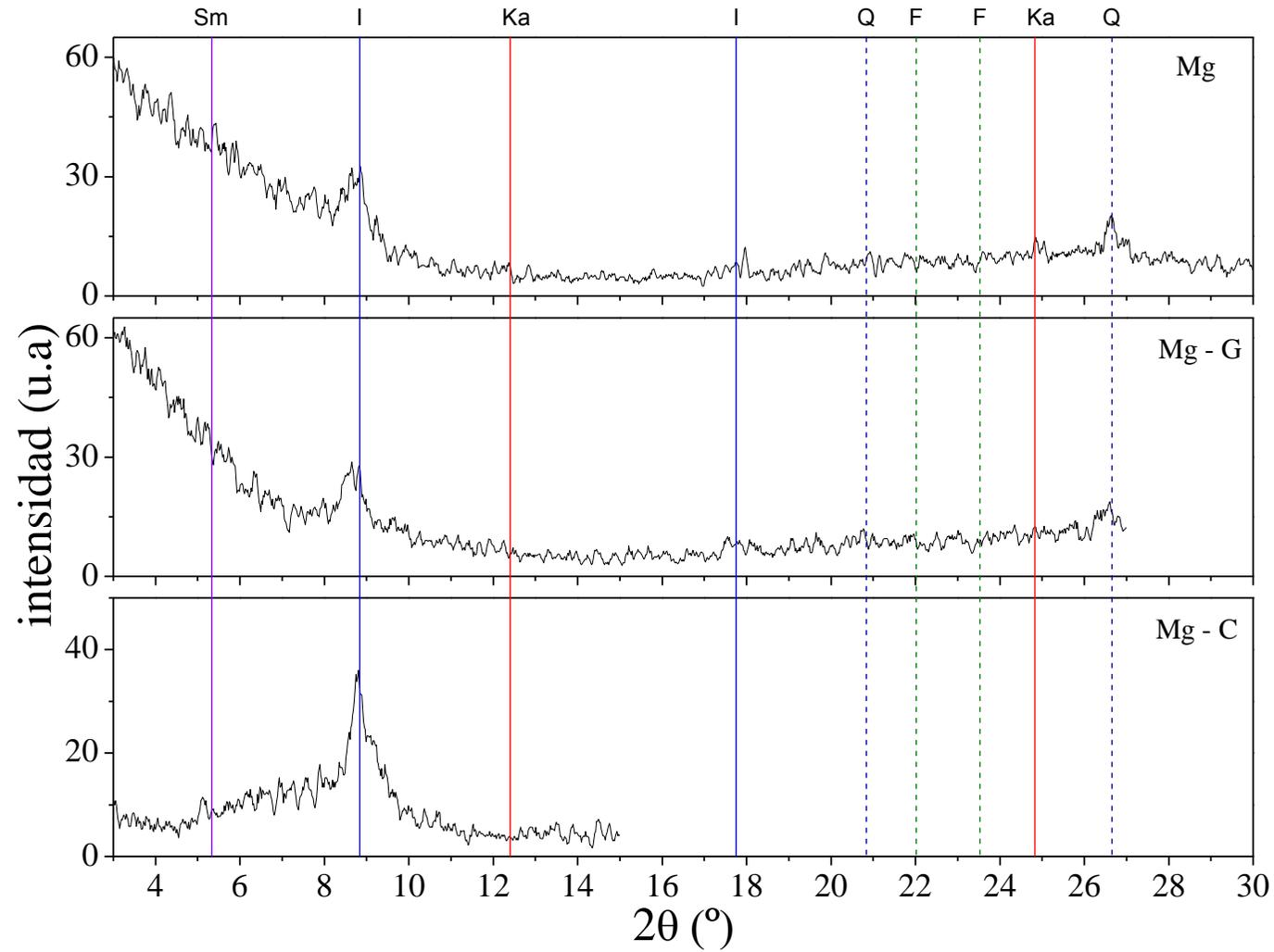


Figura 0.20: Difractogramas de la muestra superficial de la zona de Los Hornos. Mg indica que la muestra está saturada con magnesio, Mg-C, saturada con magnesio y glicolada y C, saturada con magnesio y calcinada. Sm, I, Ka, Q y F representan esmectita, illita, caolinita, cuarzo y feldespato, respectivamente.

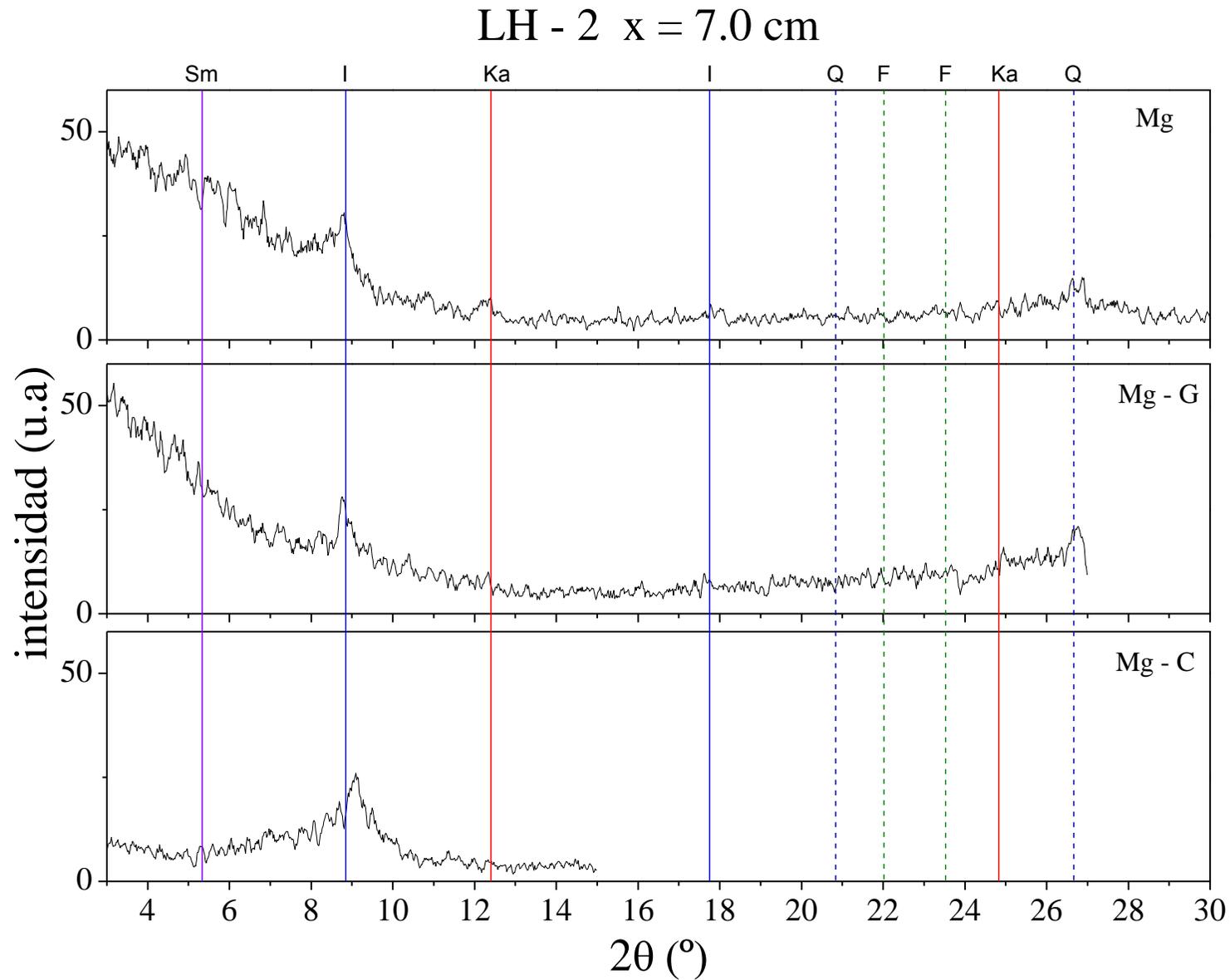


Figura 0.21: Difractogramas de la muestra LH-2 tratadas con magnesio (Mg), con magnesio y glicolada (Mg-G) y tratada con magnesio y calcinada (Mg-C). Sm, I, Ka, Q y F representan esmectita, illita, caolinita, cuarzo y feldespato, respectivamente.

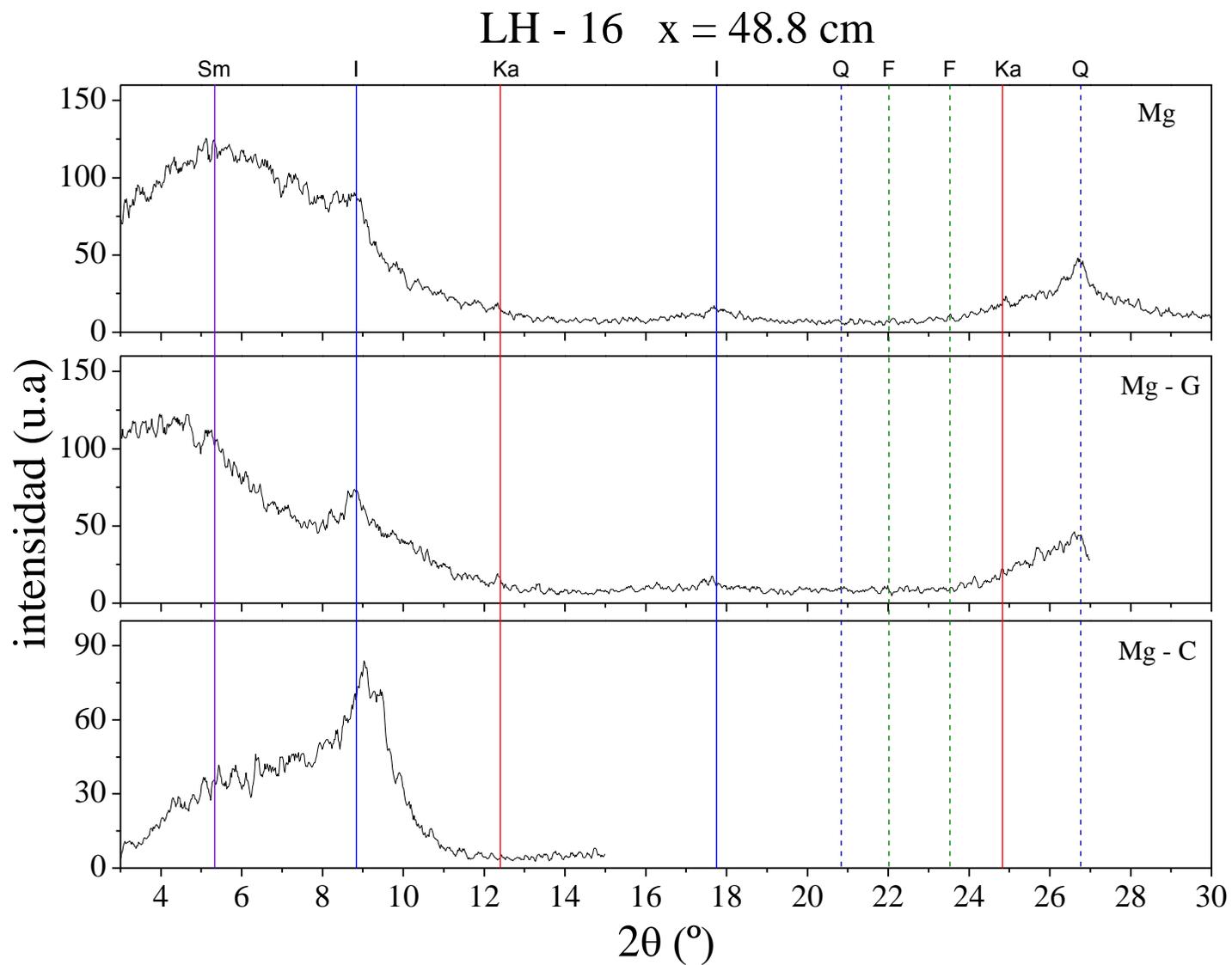


Figura 0.22: Difractogramas de la muestra LH-16 pretratada con magnesio. G y C indican los pre-tratamientos adicionales de glicolado y calcinado, respectivamente.

VA - 1 x = 4.0 cm

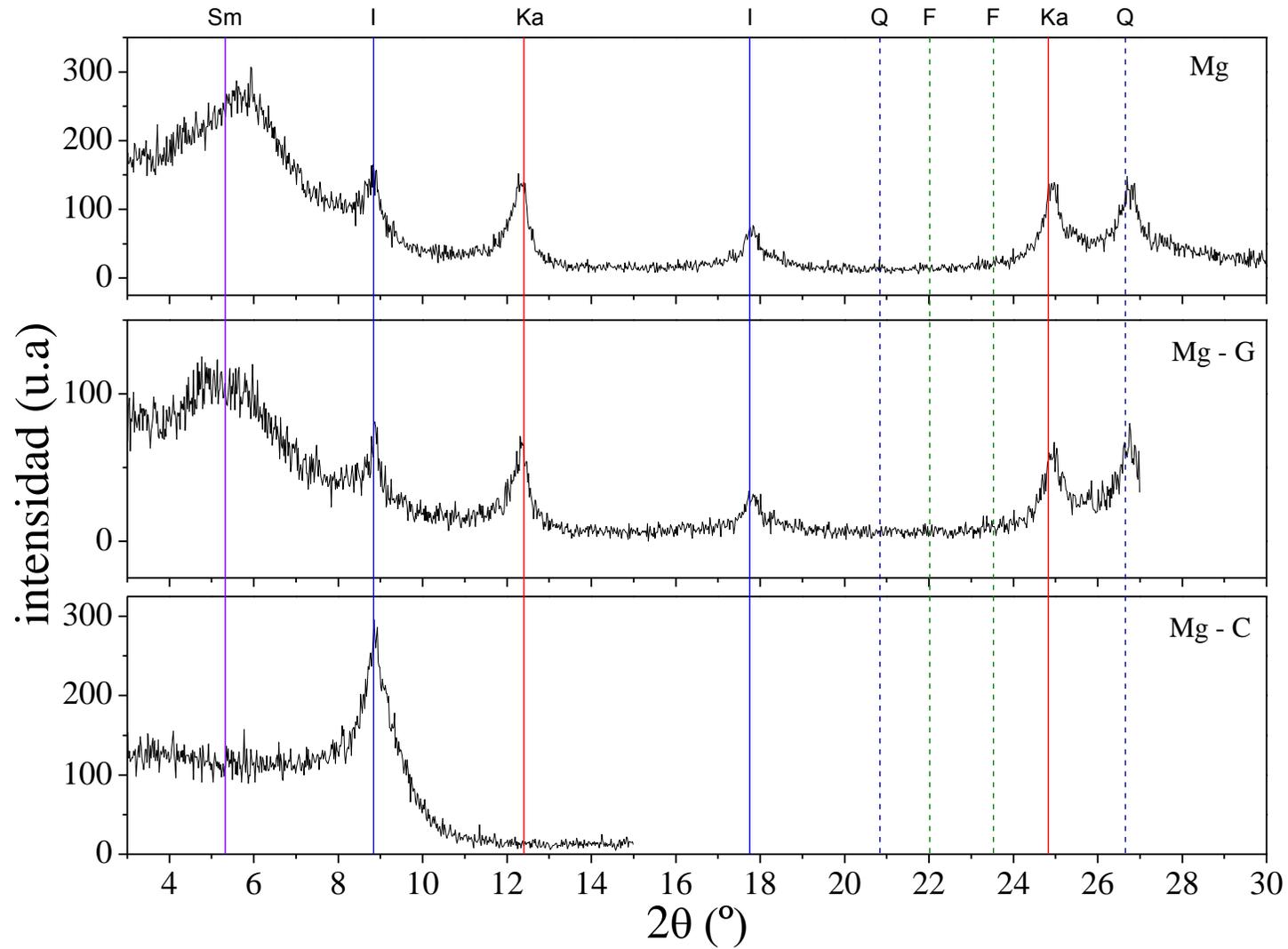


Figura 0.23: Difractogramas obtenidos para la muestra superficial de Villa Argüello. Las muestras pre-tratadas con magnesio (Mg) fueron glicoladas (G) y calcinadas (C). Las líneas indican la posición esperada de los picos debido a la presencia de esmectitas (Sm), illita (I), caolinita (Ka), cuarzo (Q) y feldespato (F).

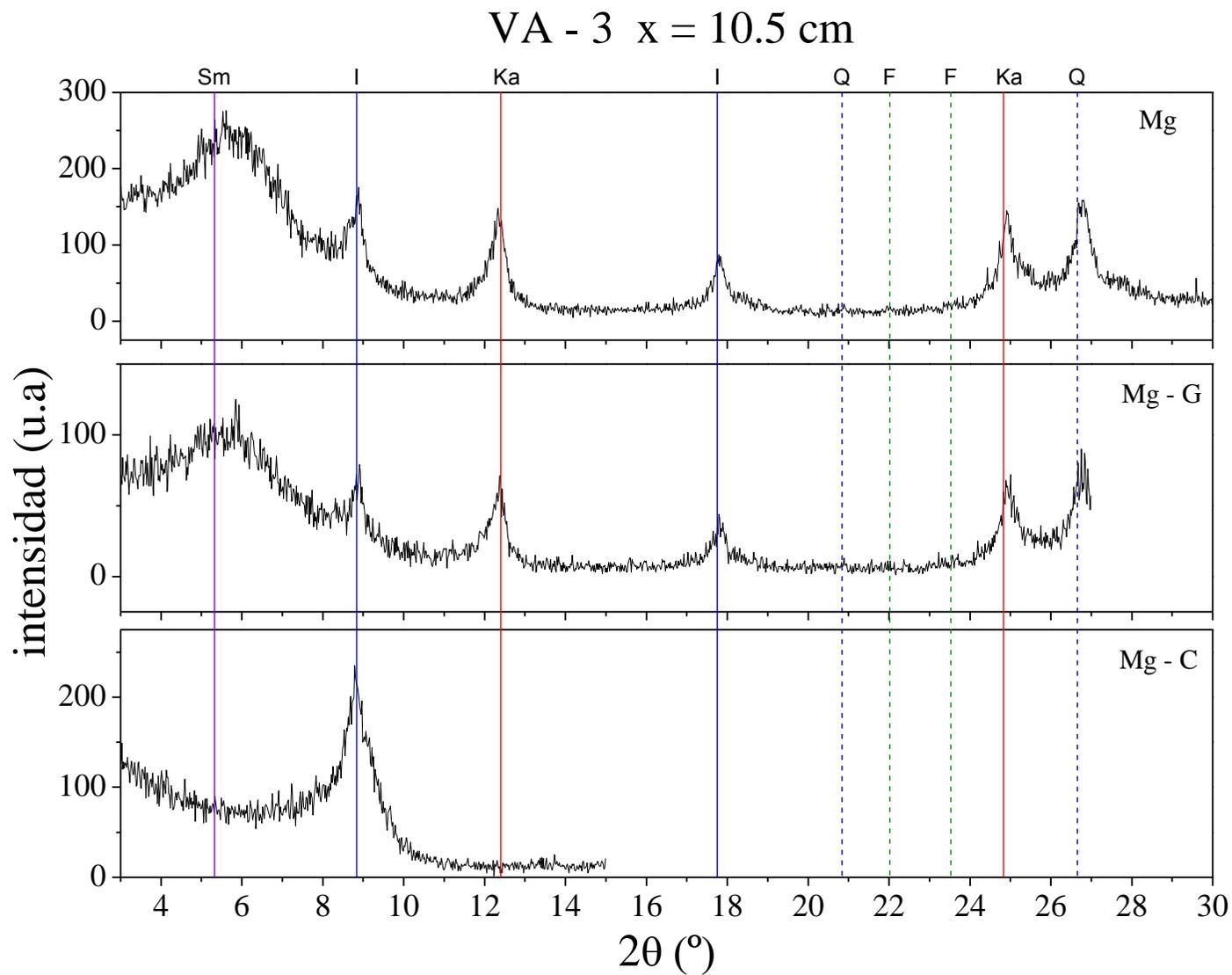


Figura 0.24: Difractogramas obtenidos para la muestra VA – 3, con máxima concentración de Cs. La muestra natural homoionizada con Mg, además fue pre-tratada con glicol (G) y calcinada (C). Las líneas indican la posición esperada de los picos debido a la presencia de esmectitas (Sm), illita (I), caolinita (Ka), cuarzo (Q) y feldespato (F).

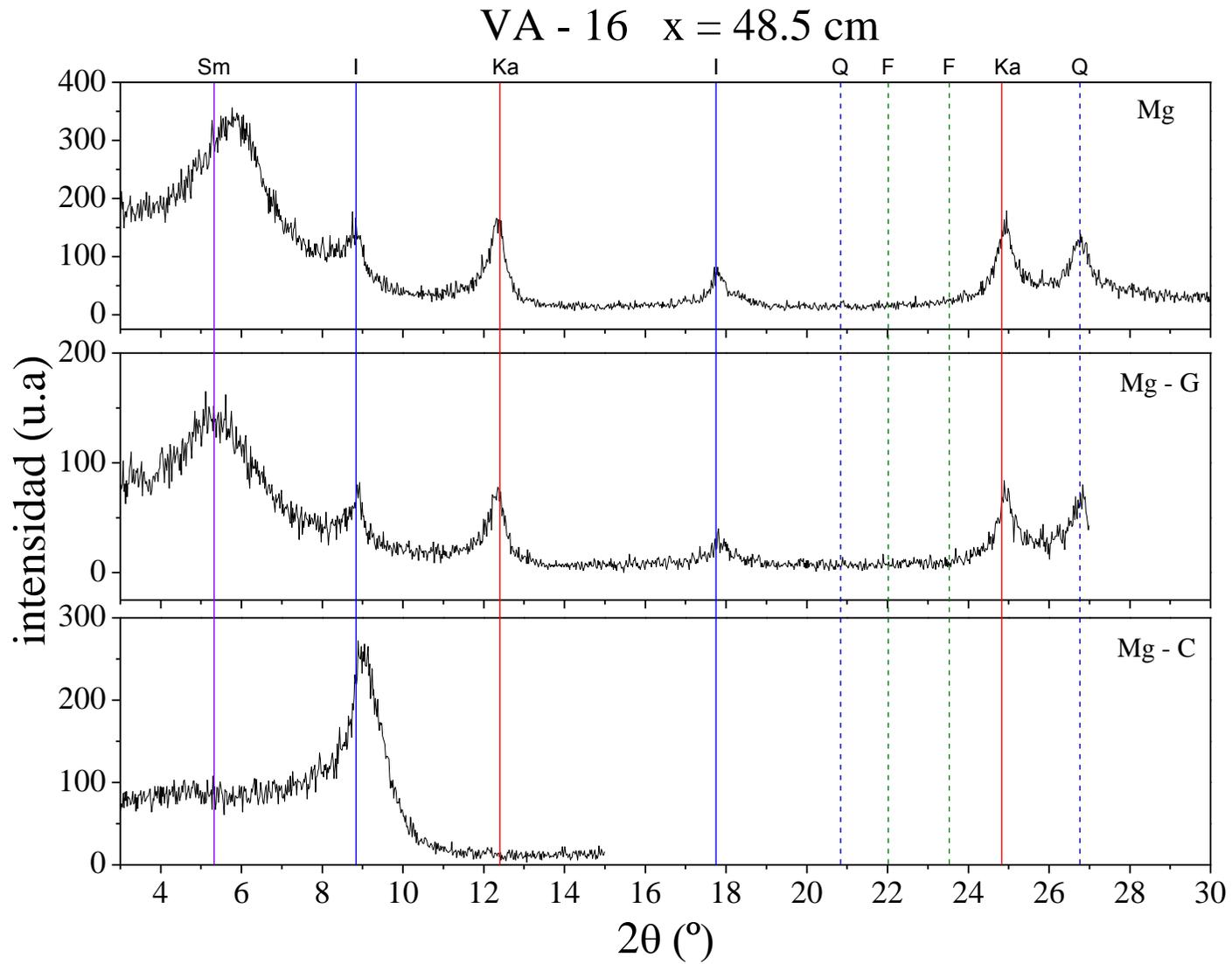


Figura 0.25: Difractogramas de la muestra Va – 16 homoionizada con Mg (Mg), homoionizada y glicolada (Mg-G) y homoionizada y calcinada (Mg-C). Las líneas indican la posición esperada de los picos debido a la presencia de esmectitas (Sm), illita (I), caolinita (Ka), cuarzo (Q) y feldespato (F).

PP - 1 $x = 3.0$ cm

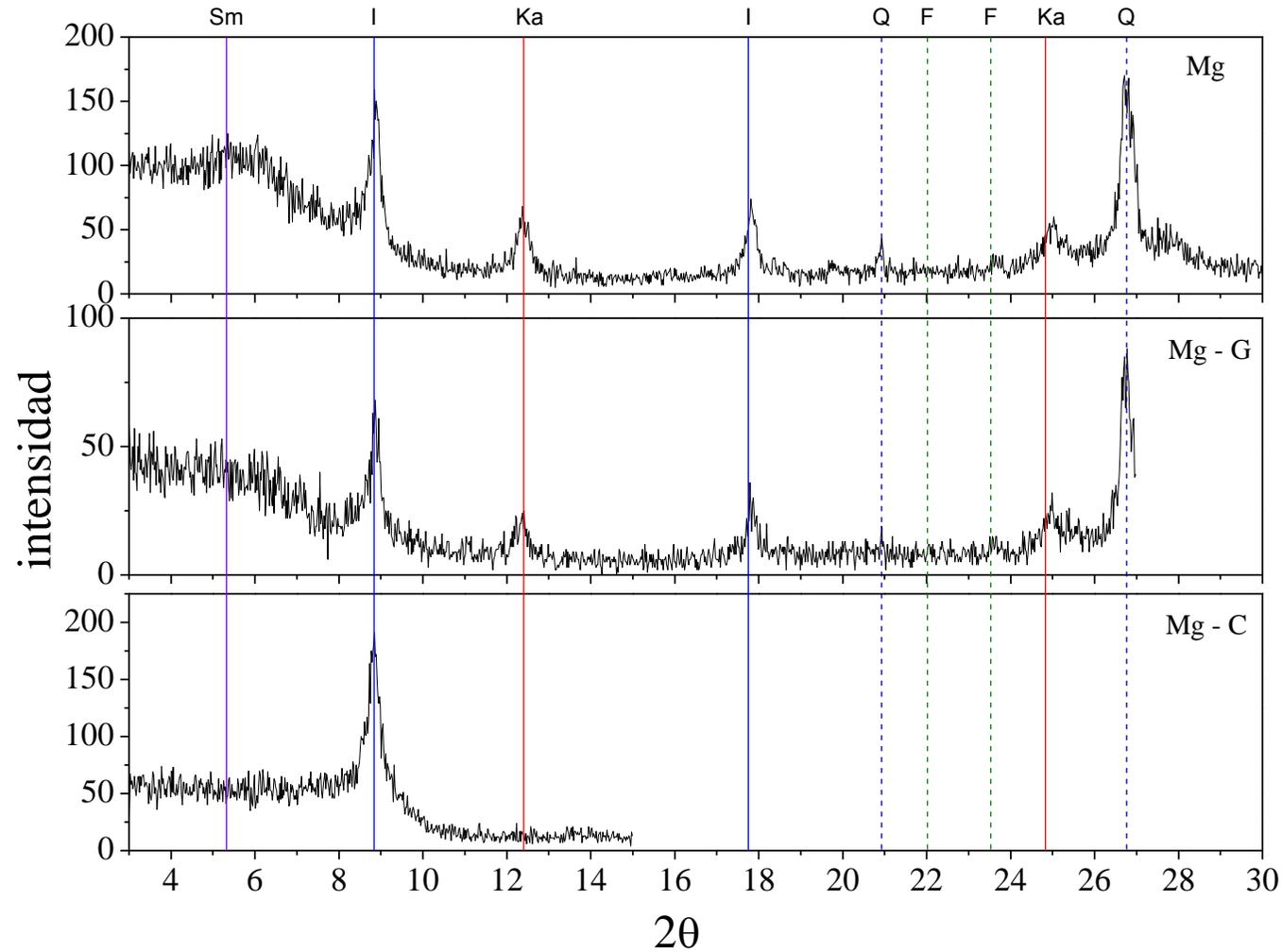


Figura 0.26: Difractogramas de la muestra superficial de la zona del Parque Pereyra Iraola. Mg, Mg-G y Mg-C indican que la muestra fue homoionizada con magnesio, homoionizada y gliocolada y homoionizada y calcinada, respectivamente. Las líneas indican la posición esperada de los picos debido a la presencia de esmectitas (Sm), illita (I), caolinita (Ka), cuarzo (Q) y feldespato (F).

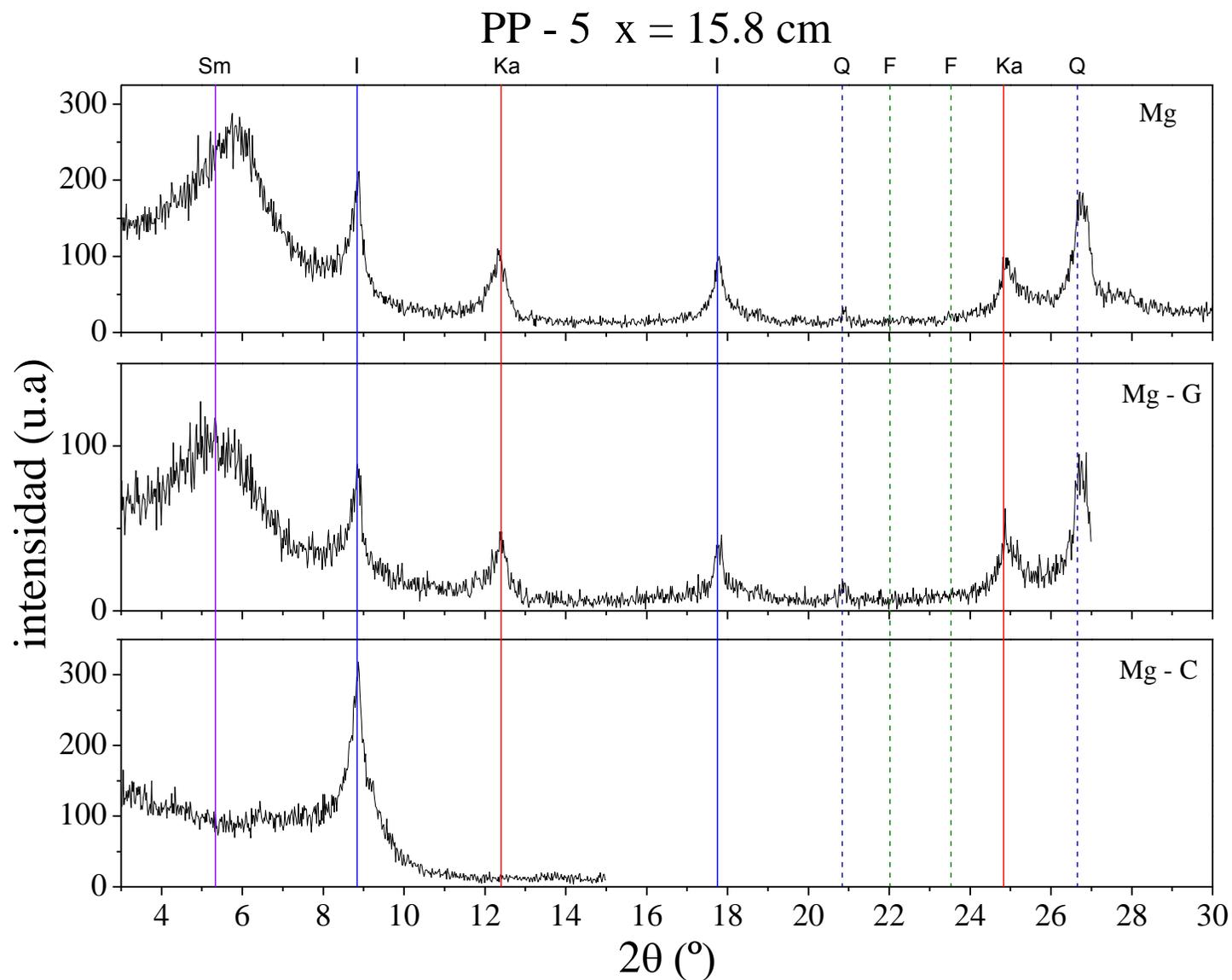


Figura 0.27: Difractogramas correspondientes a la muestra PP – 5. Mg, indica que la muestra fue homoionizada con Mg, mientras que Mg-G y Mg-C simboliza las muestras pre-tratadas con magnesio y glicoladas y calcinadas, respectivamente. Las líneas indican la posición esperada de los picos debido a la presencia de esmectitas (Sm), illita (I), caolinita (Ka), cuarzo (Q) y feldespato (F).

PP - 16 x = 44.8 cm

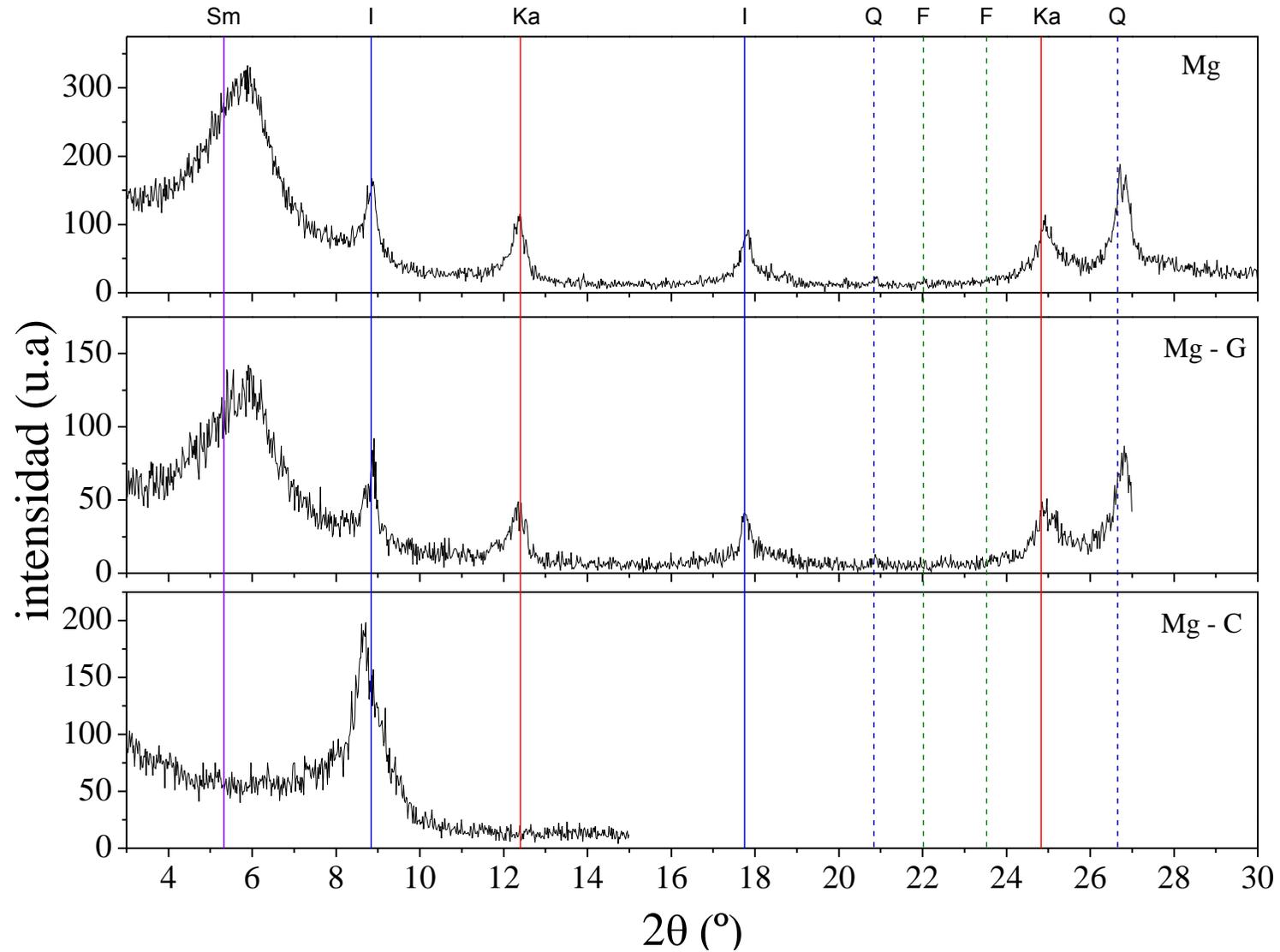


Figura 0.28: Difractogramas obtenidos para la muestra PP-16. Mg-G y Mg-C indican que la muestra fue homoionizada, homoionizada y glicolada y homoionizada y calcinada, respectivamente. Sm, I, Ka, Q y F representan esmectita, illita, caolinita, cuarzo y feldespato, respectivamente.

RP - 1 $x = 3.5$ cm

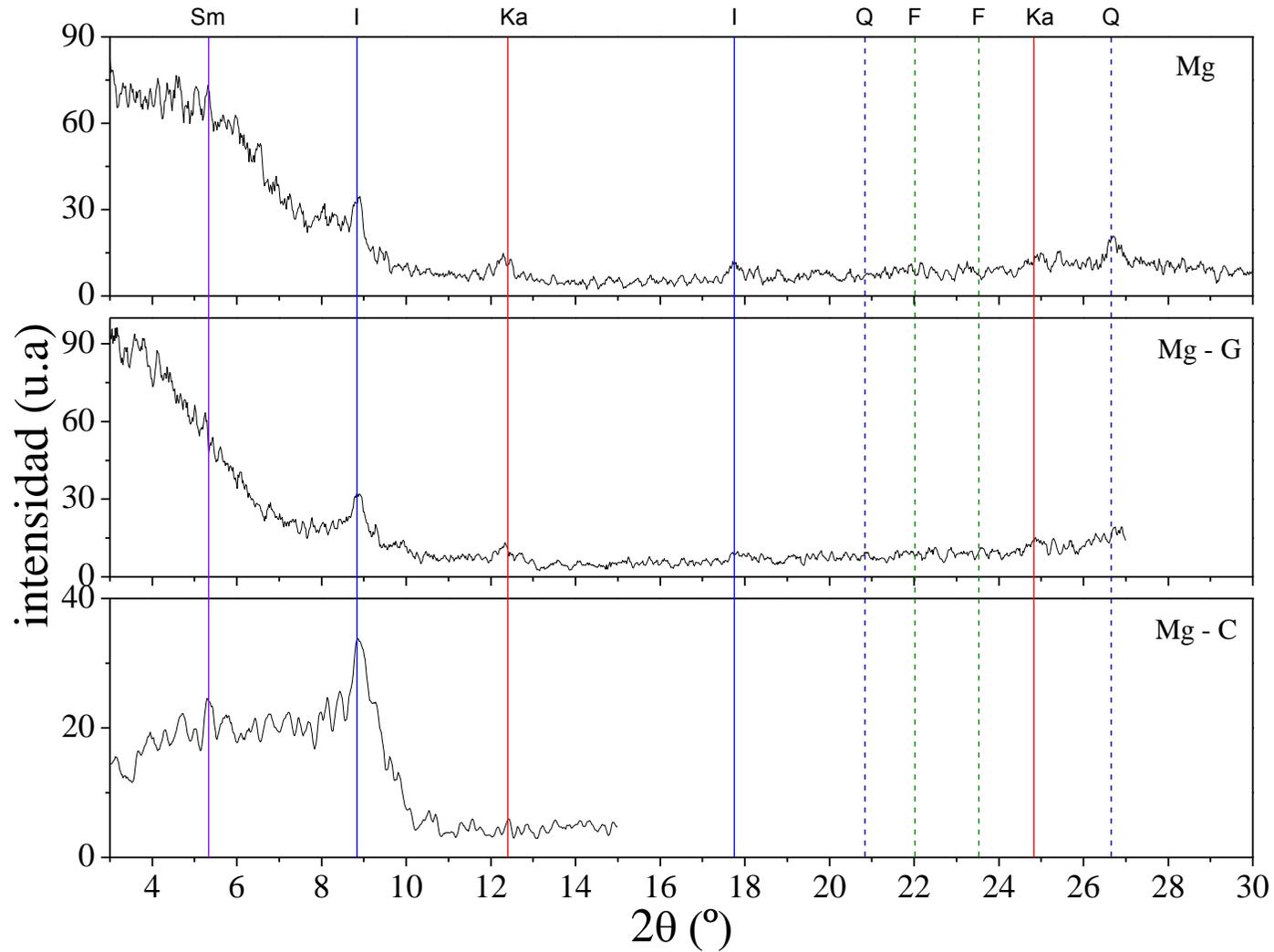


Figura 0.29: Difractogramas de la muestra superficial de Radio Provincia, pre tratada con magnesio (Mg), con magnesio y glicolada (Mg-G) y con magnesio y calcinada (Mg-C). Sm, I, Ka, Q y F representan esmectita, illita, caolinita, cuarzo y feldespato, respectivamente.

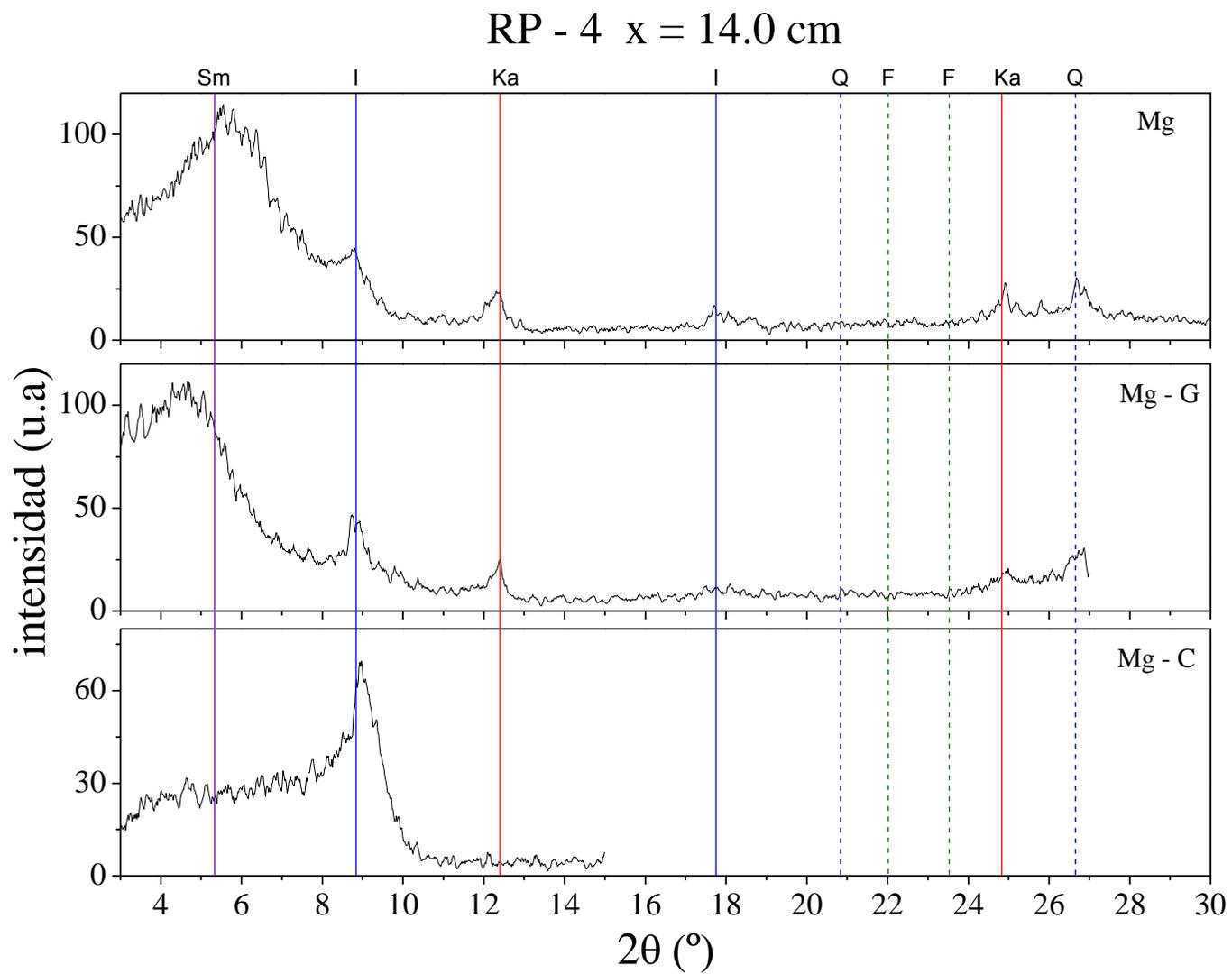


Figura 0.30: Difractogramas de la muestra RP-4, tratada con magnesio (Mg), con magnesio y glicolada (Mg-G) y con magnesio y calcinada (Mg-C).

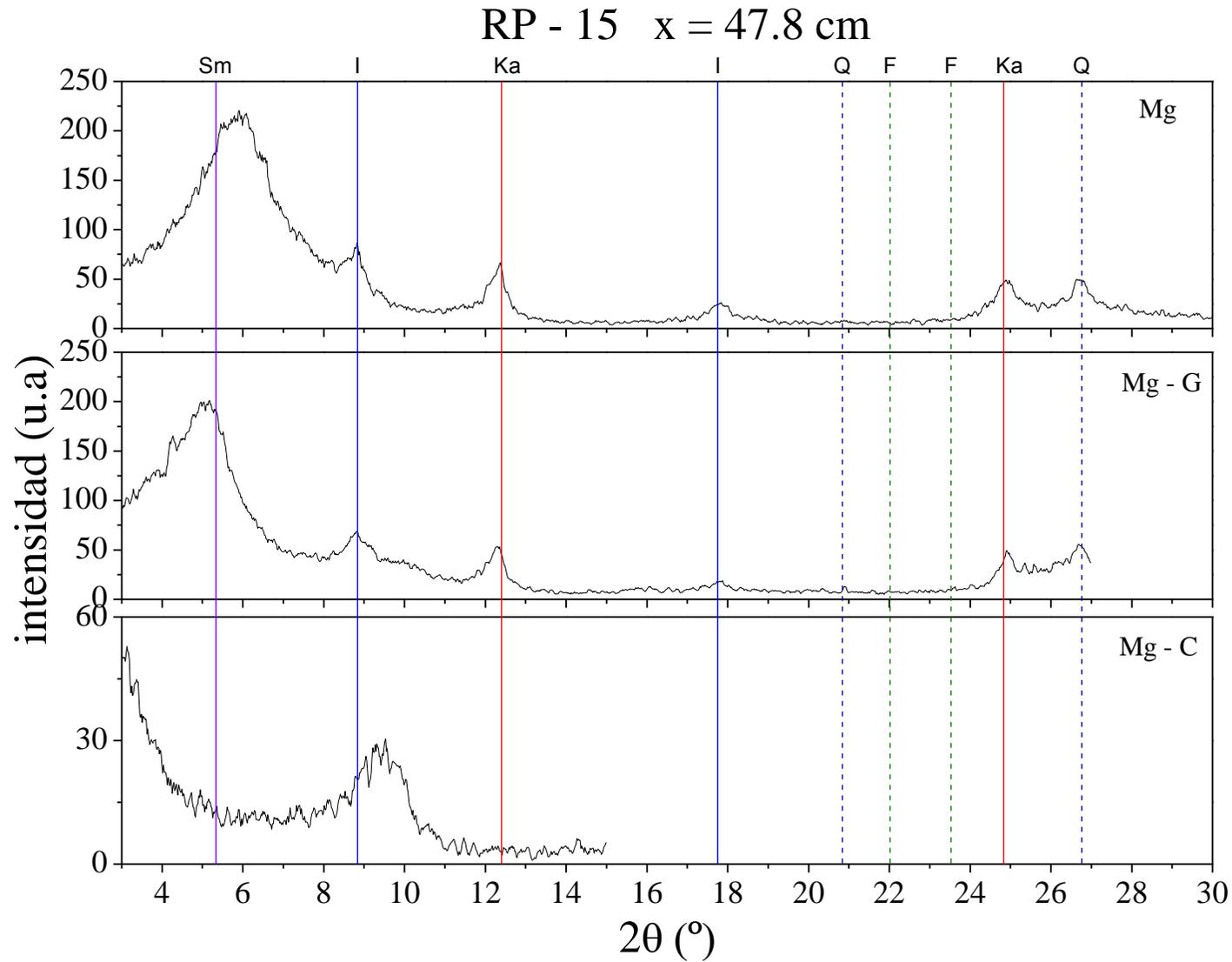


Figura 0.31: Difractogramas para la muestra RP -15. Mg, Mg-G y Mg-C indican que la muestra fue homoionizada, homoionizada y glicolada y homoionizada y calcinada. Sm, I, Ka, Q y F representan esmectita, illita, caolinita, cuarzo y feldespato, respectivamente.

Anexo II: Publicaciones Originadas en el Trabajo de Tesis

M. L. Montes, M. A. Taylor, J. Runco, L. Errico, J. Martinez, J. Desimoni. 2008. Implementación de la técnica de espectroscopía gamma para la determinación de humedad en suelos. ANALES AFA, Vol. 20, ISSN 0327-358X.

M. L. Montes, M. A. Taylor, R. C. Mercader, F. R. Sives and J. Desimoni. 2009. Hyperfine and radiological characterization of soils of the province of Buenos Aires. Argentina. Journal of Physics: Conference Series Vol. 217, pp. 012058 012062, ISSN 1742 6596.

M. L. Montes, R. C. Mercader, M. A. Taylor, J. Runco, P. Imbellone, P. C. Rivas and J. Desimoni, 2010, Radiological and Hyperfine Characterization of soils from the Northeastern region of the Province of Buenos Aires, Argentina. Hyperfine Interactions. ISSN 0304 3834.

M. L. Montes, J. Desimoni, 2011. Radiological survey in soils of South America. Radiological Survey in Soil of South America, in Radioisotopes-Applications in Physical Sciences, capítulo 11, 197-224, ISBN 978-953-307-355-2.

M.L. Montes, R.C. Mercader, M.A. Taylor, J. Runco, J. Desimoni. 2012. Assessment of natural radioactivity levels and their relationship with soil characteristics in undisturbed soils of the northeast of Buenos Aires province, Argentina. Journal of Environmental Radioactivity 105, 30-39. ISSN: 0265-931X.

J. Desimoni, M.L.Montes, Errico, L., Taylor, M.A. Martinez, J. 2012. Radioactividad en el medio ambiente. Editorial Académica Española. ISBN 978-3-659-00892-4.

M.L. Montes and J. Desimoni, 2013. Inventories of natural radioactivity in groundwater of South America, In Gamma Rays: Technology, Applications and Health Implications, capítulo 6. Nova Science Publishers, Inc. ISBN: 978-1-62257-697-5.

M.L. Montes, L.M.S. Silva, C.S.A. Sá, J. Runco, M.A. Taylor, J. Desimoni, 2013. Inventories and concentration profiles of ^{137}Cs in undisturbed soils in the northeast of Buenos Aires Province, Argentina. Journal of Environmental Radioactivity 116, 133-140. ISSN: 0265-931X.

Glosario

Cantidades, símbolos y unidades

A : Actividad másica (Bq/kg).

C_{org} : Pporcentaje de carbono orgánico (%).

D : Tasa dosis absorbida a un metro de la superficie terrestre (nGy/h).

D_c : Dosis efectiva por decaimiento de un radionucleido específico liberado en un ensayo nuclear atmosférico (mSv).

DAE_{nat} : Dosis Equivalente Efectiva Anual por fuentes naturales (mSv).

DAE_s : Dosis efectiva anual equivalente por el decaimiento de los radionucleidos en el suelo (mSv).

D_B : Coeficiente de bio-difusión

D_d : Coeficiente de difusión-dispersión (cm²/año)

D_{eff} : Coeficiente de difusión molecular efectivo (cm²/año).

F: Feldespato

H- Campo magnético hiperfino (T).

Hc-campo coercitivo (mT).

I- illita (%)

k : Tasa de transferencia del estado móvil al ligado en forma irreversible (a⁻¹).

k_{eff} : Tasa de transferencia efectiva del estado móvil al ligado en forma irreversible (a⁻¹).

K_D : Coeficiente de partición (ml/g).

Ka: Caolinita (%).

M: Magnetización (Am²/kg).

Ms: Magnetización de saturación (Am²/kg).

Mr: Magnetización de remanencia

Q: Cuarzo.

Sm: Esmectitas (%)

v : Velocidad de convección (cm/a).

v_{eff} : Velocidad de convección efectiva (cm/a).

χ_{hi} : Susceptibilidad magnética de alto campo (m³/kg).

ε : Porosidad del medio difusor (unidimensional).

δ : Densidad del suelo, (g/cm³).

δ : Corrimiento isométrico (mm/s).

Δ : Desdoblamiento cuadrupolar (mm/s).

ε : Corrimiento cuadrupolar (mm/s).

Acrónimos y Siglas

ARN: Autoridad Regulatoria Nuclear.

DRX: Difracción de Rayos X.

HPGe: Detector de tipo semiconductor de germanio hiperpuro.

IAEA: International Atomic Energy Agency.

MCA: Analizador Multicanal (de su nombre en inglés *Multichannel Analyzer*).

MO: materia orgánica.

FES: Del inglés *Fradge Edge Sites*.

RES- sitios de intercambio regular o planar , del inglés *Regular Exchange Sites*)

ODCDE: Modelo de transporte considerado la difusión, la convección y la dispersión hidrodinámica

ODCDFE: Modelo de transporte considerado la difusión, la convección y la dispersión hidrodinámica con fijación irreversible.

UNSCEAR: acrónimo de United Nations Scientific Committe On the Effects of Atomic Radiation.

VSM: Magnetómetro de muestra vibrante.