



^{210}Po EN ORGANISMOS MARINOS CONSUMIDOS POR LA POBLACIÓN SEVILLANA

Inmaculada Diaz-Francés¹, Juan Mantero¹, Guillermo Manjón¹ y Rafael García-Tenorio^{1,2}

¹Grupo Física Nuclear Aplicada, Universidad de Sevilla

²Centro Nacional de Aceleradores (CNA), Sevilla

RESUMEN

El ^{210}Po es un radionucleido de la serie natural del uranio presente en los distintos compartimentos naturales y que se caracteriza por presentar una alta radiotoxicidad y tener un comportamiento bioacumulativo en determinados tejidos en seres vivos. Por lo tanto, contribuye a la dosis recibida en organismos del medio marino y, consecuentemente tras su ingesta, a la dosis por ingestión en la población que los consume. Este trabajo muestra la dosis asociada a dicho consumo sobre un amplio espectro de especies marinas frecuentemente consumidas en Sevilla. Las muestras fueron cocinadas en la forma habitual de consumo y tras este proceso, se ha llevado a cabo un proceso de digestión mediante microondas con una posterior medida del ^{210}Po por espectrometría alfa. Los valores de ^{210}Po encontrados varían hasta en tres órdenes de magnitud (desde $0,09 \pm 0,01$ Bq/kg peso húmedo en sepia preparada a la plancha hasta 140 ± 4 Bqkg⁻¹ en boquerones en vinagre) generando estos últimos una dosis de 340 $\mu\text{Sv/año}$ estimada sobre la base de un consumo típico de esta especie. Los resultados obtenidos ponen de manifiesto las altas concentraciones de ^{210}Po en algunas especies marinas consumidas con asiduidad por la población sevillana que son, por otra parte, en la mayoría de los casos uno o varios órdenes de magnitud superiores a las determinadas para otros radionucleidos pertenecientes a su misma serie radiactiva natural como los isótopos de Uranio (^{234}U y ^{238}U). Ello, unido a su alta radiotoxicidad, convierte al ^{210}Po en el radionucleido natural que contribuye en mayor proporción a la dosis por ingestión recibida por la población sevillana debida al consumo de estos productos.

Palabras claves: Polonio, organismos marinos, bioacumulación, dosis por ingestión.

ABSTRACT

^{210}Po is a natural radionuclide belonging to the uranium series that can be found in different compartments in the environment. It is characterized for presenting a high radiotoxicity and a bioaccumulative behavior in some biological tissues. This is why it contributes strongly to the dose received by marine organisms, and consequently after consumption, to the ingestion dose in the population that consume them. This work shows the doses associated with this consumption on a wide range of marine species frequently consumed in Seville. The samples were cooked in the usual way they are ingested. After this process, a microwave digestion was carried out followed by a final measurement of ^{210}Po via alpha spectrometry. The values found for ^{210}Po range up to three orders of magnitude (from 0.09 ± 0.01 Bqkg⁻¹ wet weight in prepared grilled cuttlefish to 140 ± 4 Bqkg⁻¹ in anchovies in vinegar) generating the last one a dose of 340 $\mu\text{Sv/year}$, estimated on the basis of a typical consumption of this species. With these results, it is proved the high concentrations of ^{210}Po in marine species regularly consumed by the population of Seville. Compared to other radionuclides belonging to the same natural radioactive series, uranium isotopes (^{234}U and ^{238}U) has, in most cases, one or several orders of magnitude lower concentrations than polonium isotopes. This fact together with the high radiotoxicity of polonium, makes the ^{210}Po as the natural radionuclide that contributes the most to the ingestion dose received by the population of Seville due to consumption of these products.

Key Words: polonium, marine biota, bioaccumulation, ingestion doses.

1. Introducción.

El ^{210}Po es un radionucleido natural perteneciente a la serie del Uranio, que se encuentra de forma ubicua en cantidades trazas en los diversos compartimentos ambientales (aguas, suelos, atmósfera) y que a través de su ruta a lo largo de la cadena trófica puede terminar incorporado en el cuerpo humano vía ingestión de aguas o alimentos. En el medio marino, este radionucleido es inicialmente absorbido del agua y concentrado por el fito y zooplancton que, por estar en la base de la pirámide de alimentación marina, será quienes inicien una cadena hasta llegar a los productos marinos consumidos por la población. Este radionucleido ($T_{1/2} = 22.3$ años) [1] es altamente radiotóxico, presentando de hecho entre todos los radionucleidos naturales, el mayor valor para el coeficiente de dosis por ingestión para adultos, $1.2 \cdot 10^{-6}$ Sv/Bq (dosis efectiva comprometida por unidad de incorporación por ingestión) [2].

La alta radiotoxicidad del ^{210}Po se deriva por una parte del tipo de emisiones que este radioisótopo emite (partículas alfa) y por otra parte de su metabolismo una vez incorporado al cuerpo humano. De acuerdo con el modelo de la ICRP [2], para adultos el 10% del ^{210}Po inhalado y el 50% del ^{210}Po ingerido pasa al sistema circulatorio, mientras que el remanente no absorbido permanece en el sistema gastro-intestinal durante 24-36 horas (las partículas inhaladas no absorbidas son gradualmente transportadas hasta el esófago siguiendo posteriormente la misma ruta que el material ingerido). El ^{210}Po absorbido tiende a acumularse en el hígado (30%), en los riñones (10%), en el bazo (7%) y en la médula ósea (10%), estimándose que tras su incorporación decae en el cuerpo humano en su conjunto según una ley de decaimiento monoexponencial caracterizada por un periodo de semidesintegración efectivo de 37 días. Un tercio del ^{210}Po eliminado, es excretado con la orina, mientras que el remanente lo hace con las heces [3].

El ^{210}Po , se encuentra por otra parte presente en relativamente altas concentraciones en la biota marina, debido a su comportamiento bioacumulativo al fijarse fuertemente a ciertos tejidos internos de esta población. Como consecuencia, el ^{210}Po contribuye en una proporción muy importante a las dosis recibidas por los organismos marinos y a las dosis por ingestión de la población que los consume. En este sentido, la población española (y la andaluza en particular) tiene como un componente importante de su dieta a los productos de origen marino. Se pueden esperar pues valores superiores de la dosis por ingestión en la población española en comparación con otras poblaciones europeas donde la cultura de introducir pescado en su dieta no está tan presente, debido a la ingestión de ^{210}Po asociado a esta componente de la alimentación.

Por este último motivo, hemos realizado el estudio aquí detallado para estimar la contribución del ^{210}Po a la dosis por ingestión recibida por la población sevillana debido al consumo de pescados, moluscos y crustáceos.

2. Material y Métodos.

Las concentraciones de actividad de ^{210}Po han sido determinadas, mediante la aplicación de la técnica de espectrometría alfa, en las partes comestibles de un amplio y variado conjunto de muestras que hemos clasificado en tres grupos: A) pescados, B) moluscos y crustáceos, y C) conservas. Siempre de origen marino y adquiridos en comercios sevillanos.

2.1 Descripción de las muestras.

El grupo de los pescados está compuesto por: caballa común (*Scomber scombrus*), acedías o lenguado de seis ojos (*Dicologlossa hexophthalma*), sardinas del atlántico (*Pilchardus pilchardus*), boquerones (de la familia de los engráulidos), dorada europea (*Sparus auratus*), merluza (*merluccius merluccius*), de la cual se han analizado por separado sus huevas y por último atún común, o rojo (*Thunnus thunnus*). En cuanto a los moluscos y crustáceos, se han analizado: mejillones (*Mytilus edulis*), cañailla (*murex brandaris*), bígaro o caracol de mar

(*Littorina littorea*), coquinas (*Donax trunculus*), Almeja chirla natural (*Venerupis decusata* o *Venus gallina*), gamba blanca (*Parapenaeus longirostris*), langostinos (*Panaeus kerathurus*) y choco o sepia (*Sepia officinalis*). Las muestras relativas a conservas se han reducido a muestras de berberechos enlatados (*Cerastoderma edulis*) y anchoas (que no deja de ser más que boquerón en conserva).

2.2 Metodología seguida.

Cada muestra representativa de las distintas especies en estudio ha sido cocinada, secada, triturada y homogeneizada, para someter posteriormente a alícuotas representativas de cada muestra a un proceso de digestión mediante horno microondas.

En la determinación de U y Po por espectrometría alfa en matrices orgánicas es necesario un paso previo de digestión. El sistema digestor usado para ello ha sido un horno microondas modelo Multiwave 3000 de Anton Paar, equipado con un rotor de 8 vasos XF100. Estos vasos pueden trabajar a una presión controlada de 60 bar y soportar temperaturas de hasta 260°C (controlados independientemente para cada vaso). Al trabajar en vasos con presión controlada, ningún gas o elemento volátil escapa durante el proceso de digestión, por lo que se evita la pérdida de ²¹⁰Po. Los vasos están realizados en teflón y van embutidos en una camisa de cerámica que aporta rigidez al conjunto. El proceso de digestión ha sido distinto según las muestras fuesen de pescado o moluscos, siguiendo el protocolo indicado por el fabricante del microondas. El proceso de toma de muestra y digestión utilizados en este trabajo se describen en la Tabla 1.

Tabla No.1 Etapas en el proceso de digestión con microondas.

	MOLUSCOS Y CRUSTÁCEOS	PESCADOS
1. Cantidad de muestra	500 µg por cada vaso del rotor	300-400 µg por cada vaso del rotor
2. Trazado	Trazadores usados ²⁰⁹ Po y ²³² U	
3. Reactivos	8mL de HNO ₃ 2mL de H ₂ SO ₄	6mL de HNO ₃ 1mL de H ₂ O ₂
4. Programa de microondas	Potencia de 800W durante 20 minutos con rampa inicial de 10 minutos	
5. Tras digestión	Se trasvasan las muestras a un vaso de cristal y se evapora hasta llegar a los 10 mL. Entonces se completa hasta llegar a los 50 mL con agua destilada.	

La solución resultante del proceso de digestión sigue un proceso de separación U/Po mediante extracción solvente con TBP [4] y cada fracción fue adaptada para proceder bien a la autodeposición selectiva del Polonio sobre planchetas de cobre [5], o bien a la electrodeposición sobre planchetas de acero para los isótopos de uranio [6]. Tras sendos procesos, ambos tipos de medidas se llevan a cabo en un sistema espectrométrico modelo AlphaAnalyst (Canberra) compuesto por ocho cámaras independientes, equipada cada una de ellas con un detector de silicio

de implantación iónica tipo PIPS (modelo A450-18AM). El software usado en el análisis de los espectros fue el Genie 2000.

2.3 Validación del método

Como test previo para trabajar con este tipo de muestras orgánicas, se ha procedido con la medida por duplicado de dos materiales de referencia de la IAEA cuya matriz es similar a la de las muestras que componen este trabajo. De un lado, la muestra IAEA-414 se trata de muestras de peces procedentes del océano atlántico. Esta muestra se trató con el procedimiento aplicado a peces en el mediterráneo. Por otro lado, la muestra IAEA-437 está formada por mejillones del mediterráneo. Ambas muestras están certificadas en ^{210}Pb y en equilibrio secular con el ^{210}Po debido al tiempo transcurrido desde que se generaron dichas muestras (años 1997 y 2003 respectivamente). Como parámetro de validación en los resultados obtenidos sobre dos alícuotas repetidas de cada muestra de referencia se ha calculado el Z-score según muestra la ecuación (1).

$$Z - score = \frac{Valor_{medido} - Valor_{referencia}}{0.10 \cdot Value_{referencia}} \quad (1)$$

Siguiendo los criterios de la IAEA [7] en los diferentes ejercicios de intercomparación, si $|Z - score| \leq 2$ el valor medido será satisfactorio, cuestionable si $2 < |Z - score| \leq 3$ e insatisfactorio si $|Z - score| \geq 3$. En este sentido, y observando los valores obtenidos en este ejercicio de validación según se muestra en la Tabla 2, podemos considerar como satisfactorios los resultados de la metodología empleada sobre este tipo de matrices.

Tabla No.2 Resultados del proceso de validación en el método radioquímico empleado con matrices orgánicas marinas.

Muestra	Matriz	Valor de referencia (Bqkg ⁻¹)	Valor medido (Bqkg ⁻¹)	Z-score
IAEA_414	Pescado	2,22±0,67	2,59±0,32	1,67
Iaea_437	mejillones	4,6±0,9	4,1±0,4	-1,07

2.4 Estimación de dosis

Para el cálculo de dosis efectiva comprometida anual debida a la ingestión de un determinado radioelemento presente en las muestras que comprenden este estudio, se aplicará la ecuación 2.

$$D_E = A \cdot F_C \cdot C \quad (2)$$

Donde:

D_E es la dosis efectiva comprometida anual vía ingestión anual para el radionucleido evaluado (Sv/año). A es la concentración de actividad del radionucleido evaluado en la muestra analizada (Bq/Kg en peso húmedo). F_c es la dosis efectiva comprometida por unidad de actividad incorporada por ingestión para el radionucleido evaluado (Sv/Bq). El valor de F_c es dependiente del radionucleido considerado y de la edad de la población estudiada [2]. Nosotros determinaremos en este trabajo dosis efectivas comprometidas anuales por ingestión para adultos. C es la cantidad muestra ingerida por persona en un año, expresada en Kg peso húmedo/año. Este valor se ha obtenido de [8] y aparece reflejado en la Tabla 4 donde se ha diferenciado el consumo de estos productos marinos en Andalucía, del realizado en España, con el fin de comparar posibles

diferencias. Indicar que para tres tipos de muestras, no se encontraron estos datos de consumo, así que se ha hecho una estimación conservativa de consumo de 1 kg al año por persona.

3. Resultados y discusión.

Los resultados obtenidos, ponen de manifiesto las altas concentraciones de ^{210}Po en algunas especies marinas consumidas con asiduidad por la población sevillana, especialmente en algunos moluscos, tal y como queda reflejado en la Tabla 3. Es de destacar que en una proporción muy elevada, las medidas de ^{210}Po se han realizado sobre muestras que habían experimentado previamente el proceso de cocinado más característico de aplicar en nuestra zona geográfica (cocción de moluscos y crustáceos, parrillada de pescados blancos, etc), pues el objetivo es realizar una evaluación dosimétrica lo más realista posible al tener en cuenta la posible pérdida de ^{210}Po en el proceso de preparación para su consumo.

Estas concentraciones son, por otra parte, en la mayoría de los casos uno o varios órdenes de magnitud superiores a las determinadas para otros radionucleidos pertenecientes a su misma serie radiactiva natural como los isótopos de Uranio (ver Tabla 4) lo que unido a su alta radiotoxicidad, convierte al ^{210}Po en el radionucleido natural que contribuye en mayor proporción a la dosis por ingestión recibida por la población sevillana debida al consumo de estos productos. Los datos indican la existencia de un elevado fraccionamiento radiactivo en la serie del uranio, y lo erróneo que puede ser la simplificación del estudio si se asumiera la existencia de equilibrio secular entre los elementos de dicha serie.

El fraccionamiento radiactivo entre los elementos de la serie del Uranio en las especies marinas analizadas se observa incluso entre el ^{210}Po y su progenitor el ^{210}Pb , tal y como reflejan los resultados compilados en la Tabla 5. En un conjunto reducido, pero representativo de muestras se ha determinado la concentración de actividad de ^{210}Pb mediante la aplicación de la técnica de espectrometría gamma de alta resolución con un detector de germanio de baja energía (LEGe), obteniéndose concentraciones de este radionucleido al menos un orden de magnitud inferior a las concentraciones de actividad de ^{210}Po .

Se observa en definitiva un comportamiento ya descrito en la bibliografía [9,13] donde hay un patrón común de que $^{210}\text{Po} > ^{210}\text{Pb}$ en organismos marinos. Si como se indica en [16] el cociente de ambos radionucleidos oscila entre 0,5-1 para las aguas de los distintos océanos y mares del planeta, ello nos pone de manifiesto el mayor carácter bioacumulativo del Po frente al Pb.

Las estimaciones de las dosis efectivas comprometidas anuales debidas al ^{210}Po y asociadas a la ingestión de las especies marinas analizadas se muestran en la Figura 1. Se observa en dicha figura como por la ingestión media anual de algunas de las especies indicadas, los valores de las dosis pueden superar el centenar de microsievverts por año. Y se puede deducir adicionalmente como la población teniendo una dieta rica y variada en productos marinos puede recibir una dosis por ingestión debida exclusivamente al ^{210}Po superior al milisievert por año, al sumar las contribuciones debidas a diversas especies.

Este último valor es muy cercano al usado genericamente como valor medio mundial de la dosis recibida por la población por todas las fuentes naturales de radiación (2.5 mSv/año) lo que pone de manifiesto la importancia de la vía mostrada en este trabajo en la dosis total recibida por la población sevillana y española debido a fuentes naturales. Y adicionalmente indica que el mencionado valor medio global citado de 2.5 mSv/año subestima el valor que habría que asociar a la población de nuestro país.

Tabla No.3 Concentración de actividad de ^{210}Po en Bqkg^{-1} peso húmedo en las distintas muestras analizadas y comparativa con valores bibliográficos.

PESCADOS	^{210}Po	Valores encontrados en bibliografía	Referencia
merluza	2,39±0,17	6,4±0,3	[9]
huevas de merluza	11,01±0,44	52±2	[9]
sardinas	39,93±1,31	66±2	[9]
boquerones	140,06±4,16	203 y 158	[10]
atún	3,42±0,13	3,0±0,1	[9]
caballa	16,93±0,02	3,5±0,2 y 19±1	[9]
dorada	0,15±0,04	3,1±0,6	[11]
acedias	27,55±1,04	-	
MOLUSCOS Y MARISCOS			
Almejas	43,50±1,10	152±19	[9]
mejillones	84,47±2,25	80 hasta 220	[12]
Chocos	0,09±0,02	0,08	[13]
Gamba	21,04±0,52	17 hasta 810	[14]
langostinos	0,39±0,03	107±8*	[14]
coquinas	64,44±2,04	-	
cañiellas	15,77±0,46	-	
Bígaros	5,07±0,17	13,1 hasta 399	[15]
CONSERVAS			
Berberechos	26,69±0,62	5,8±0,3	[9]
Anchoas	1,35±0,07	-	

*En peso seco y con el crustáceo incluyendo el hepatopáncreas

A efectos comparativos, en la Figura 2 se muestran las dosis efectivas comprometidas anuales debidas al ^{234}U por la ingestión de las especies marinas analizadas. Los valores obtenidos son, de forma general, unos tres órdenes de magnitud inferiores a los obtenidos para el ^{210}Po , debido al efecto combinado de las claramente menores concentraciones de actividad de U en relación con el ^{210}Po , y su menor radiotoxicidad (reflejado en un valor claramente inferior de Fc, ecuación 2, para los isótopos de U).

Tabla No.4 Concentración de actividad de isótopos de uranio en Bqkg⁻¹ peso húmedo en las distintas muestras analizadas. (*) Consumo per cápita anual (en kg) según [8] de las distintas especies. NM significa no medido

PESCADOS	²³⁴ U	²³⁸ U	ANDALUCÍA*	ESPAÑA*
Merluza	<0,03	<0,04	3,29	4,15
huevas de merluza	0,10±0,03	0,04±0,01	1,00	1,00
Sardinas	0,07±0,02	<0,07	2,67	2,01
Boquerones	<0,17	<0,19	2,67	2,01
Atún	<0,03	<0,03	0,44	0,58
Caballa	0,04±0,01	0,03±0,01	0,44	0,40
Dorada	NM	NM	0,81	0,67
Acedias	0,04±0,01	0,03±0,01	1,00	1,00
MOLUSCOS Y MARISCOS				
Almejas	0,77±0,22	0,70±0,20	1,11	0,72
Mejillones	NM	NM	0,89	1,29
Chocos	0,06±0,01	<0,02	1,47	1,66
Gambas	<0,04	<0,04	2,80	2,43
Langostinos	0,02±0,01	<0,02	2,80	2,43
Coquinas	0,51±0,13	0,43±0,11	1,00	1,00
Cañailas	0,54±0,15	0,43±0,11	1,00	1,00
Bígaros	0,82±0,19	0,72±0,17	1,00	1,00
CONSERVAS				
Berberechos	0,80±0,17	0,71±0,15	0,002	0,09
Anchoas	0,11±0,04	0,07±0,03	0,12	0,12

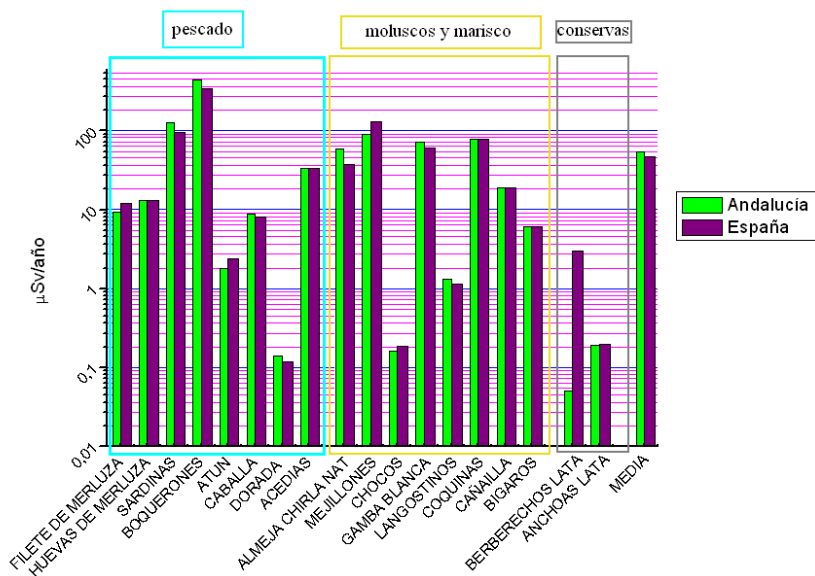


Fig. 1 Dosis asociadas al ²¹⁰Po según ingesta de productos marinos en Andalucía y España.

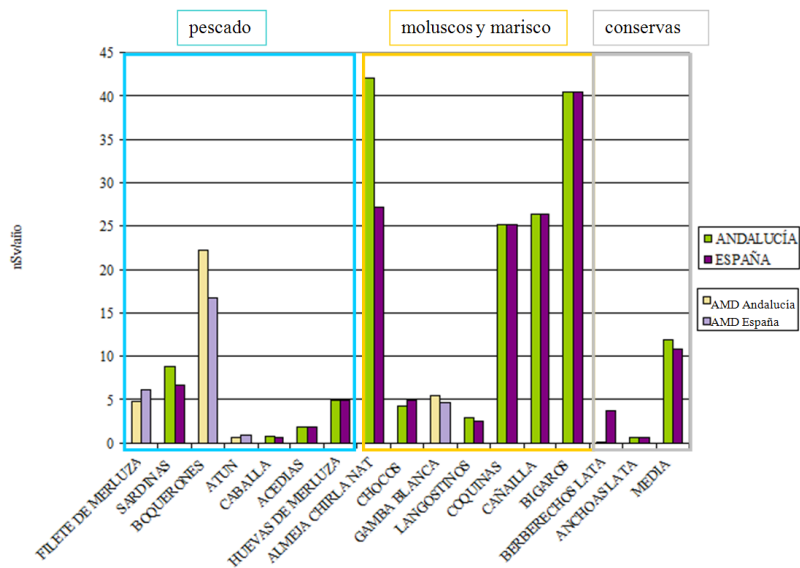


Fig. 2 Dosis asociadas al ²³⁴U según ingesta de productos marinos en Andalucía y España.

Tabla No.5 Concentración de actividad de ^{210}Pb y ^{210}Po en Bqkg^{-1} peso seco y cociente $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ en algunas muestras de este trabajo.

Muestra	^{210}Pb	^{210}Po	Po/Pb este trabajo	Po/Pb en bibliografía	referencia
Caballa	< 6	42	>8	20	[9]
Boquerones	12±3	524	44	-	
Sardinas	<10	123	>12	66	[9]
Mejillones	13±2	303	23	51	[9]

REFERENCIAS

- [1] Firestone, R.B. "Table of Isotopes" Eight Edition. John Wiley and Sons. 1996
- [2] ICRP, 1992. Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides Part 2 Ingestion Dose Coefficients. ICRP Publication 67. Ann. ICRP 22 (3-4).
- [3] Hormann W. y Fischer H.W. Internal decontamination of persons after ingestion or inhalation of ^{210}Po and ^{210}Pb . Proceedings International topical Conference on Po and radioactive Pb isotopes (in press). Editores. García-Tenorio R. y Manjón R. 2011.
- [4] Martínez-Aguirre, A.: Radioactividad natural en diversos compartimientos naturales de Andalucía. PhD thesis, Seville University, 1991.
- [5] Díaz-Francis Inmaculada. Ingestión de ^{210}Po a través de aguas y alimentos. Revista Radioprotección. Nº65 Vol XVII Radiactividad Ambiental. 2010
- [6] Hallstadius, L.: A method for Electrodeposition of actinides. Nucl. Instrum. Meth. 223, 226 (1984).
- [7] IAEA 2008. Worldwide proficiency test: determination of naturally occurring radionuclides in phosphogypsum and water. IAEA-CU-2008-03.
- [8] "La alimentación en España". Ministerio de Medio Ambiente y Medio Rural Urbano. Edición 2006
- [9] Carvalho, F.P. Polonium ^{210}Po and ^{210}Pb in marine organisms and their transfer in marine food chains. Journal of Environmental Radioactivity, 2011 (in press).
- [10] Cherry, R.D., Heyraud, M., Rindfuss, R. Polonium-210 in teleost fish and in marine mammals: interfamily differences and a possible association between Polonium-210 and red muscle content. Journal of environmental radioactivity 1994; 24:273-291
- [11] Connan, O., Germain, P., Solier, L., Gouret, G. Variations of ^{210}Po and ^{210}Pb in various marine organisms from Western English Channel: contribution of ^{210}Po to the radiation dose. Journal of Environmental Radioactivity 2007; 97:168-188
- [12] Dahlgaard, H. Polonium-210 in mussels and fish from the Baltic North Sea Estuary. Journal of Environmental Radioactivity 1996; 32: 91-96.
- [13] Heyraud, M., Cherry, R.D.. Polonium-210 and lead-210 in marine food chains. Marine Biology 1979; 52: 227-236.
- [14] Cherry, R.D., Heyraud, M., Polonium-210 content of marine shrimp: variation with biological and environmental factors. Marine Biology 1981; 65:165-175
- [15] McDonald, P., G. T. Cook, and M. S. Baxter. Natural and artificial radioactivity in coastal regions of UK. Radionuclides in the Study of Marine Processes (Eds P. J. Kershaw and D. S. Woodhead). Elsevier Applied Science, London and New York, 1991 pp. 286–298.
- [16] Fowler, S.W. ^{210}Po in the marine environment with emphasis on its behaviour within the biosphere. Journal of Environmental Radioactivity 2011. (in press).