

# Estudi de la interacció de l'urani i el poloni en sòls *Study of the interaction of uranium and polonium in soils*

Dídac Serraïma-López,<sup>1</sup> Miquel Vidal<sup>1</sup> i Anna Rigol<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Universitat de Barcelona (UB). Departament d'Enginyeria Química i Química Analítica

<sup>2</sup> Universitat de Barcelona (UB). Institut de Recerca de l'Aigua

**Resum:** Els materials radioactius d'origen natural (NORM) contenen radionúclids d'origen natural (NOR) com l'urani i el poloni. Algunes activitats industrials poden generar residus NORM, i la lixiviació dels radionúclids que contenen pot suposar un risc de contaminació dels sòls i dels recursos hídrics. Per aquest motiu és essencial estudiar la interacció dels NOR amb els sòls i predir-ne la mobilitat. En aquest estudi s'identifiquen les principals propietats del sòl que poden contribuir a la sorció de l'urani i el poloni en sòls i es proposen correlacions univariants del coeficient de distribució sòlid-líquid ( $K_d$ ) a partir d'aquestes propietats. També s'utilitzen funcions estadístiques de probabilitat per tal de proposar valors de  $K_d$  més probables en escenaris diferents.

**Paraules clau:** Sòl, urani, poloni, sorció, models de predicció de  $K_d$ .

**Abstract:** Naturally occurring radioactive materials (NORM) contain naturally occurring radionuclides (NOR), such as uranium and polonium. Certain industrial activities can generate NORM waste, and the leaching of the radionuclides which they contain may pose a risk of soil and water resource contamination. For this reason, it is essential to study how NORs interact with soils and to predict their mobility. This study identifies the main soil properties that may contribute to the sorption of uranium and polonium in soils and proposes univariate correlations of the solid-liquid distribution coefficient ( $K_d$ ) on the basis of these properties. Statistical probability functions are also used to propose more likely  $K_d$  values in different scenarios.

**Keywords:** Soil, uranium, polonium, sorption,  $K_d$  prediction models.

## Introducció

Els materials radioactius d'origen natural (NORM, de *naturally occurring radioactive materials*) són aquells que contenen radionúclids (RN) presents de manera natural. Aquests RN inclouen elements com l'urani, el tori, el radi i el poloni, entre d'altres, i es poden trobar en diversos tipus de sòls i de roques, en l'aigua i, fins i tot, en alguns aliments. La radioactivitat natural ha existit des de la formació de la Terra, i els éssers humans han estat exposats a aquesta radioactivitat durant tota la seva història. Tot i que aquesta exposició habitualment és baixa i no comporta cap risc per a la salut humana, l'acumulació de NORM pot incrementar significativament els nivells de radioactivitat en l'ambient [1]. Activitats industrials com la mineria, la producció de petroli i de gas, el tractament d'aigües residuals i, fins i tot, algunes pràctiques agrícoles, poden provocar una acumulació de residus NORM i, en conseqüència, una concentració dels RN fins a nivells perillosos [2]. A través de proces-

sos de lixiviació provocats per fenòmens meteorològics, els RN poden incorporar-se a les aigües subterrànies i superficials i contaminar així els recursos hídrics. D'aquesta manera, els éssers humans poden estar exposats a aquests RN a través de l'aigua potable contaminada, fet que pot augmentar el risc de diverses malalties, incloent-hi càncers i altres trastorns de la salut [3]. Alhora, aquest procés també pot suposar un risc per a l'ecosistema afectat, ja que els RN poden introduir-se a les xarxes tròfiques i afectar les espècies animals i vegetals que en formen part [4]. Per minimitzar aquests riscos, és crucial comprendre com els RN interaccionen amb els sòls i quins factors n'afecten la mobilitat per tal de predir l'abast potencial d'un escenari de contaminació [5].

La sorció és el procés pel qual els RN s'incorporen a les partícules del sòl i un dels mecanismes clau que pot limitar-ne la mobilitat i, per tant, la capacitat per contaminar les aigües. Les propietats del sòl —com la composició mineral, el pH, la presència de matèria orgànica (MO) i altres factors— poden influir significativament en la sorció dels RN [6]. Per quantificar la capacitat de sorció d'un RN en un sòl determinat, habitualment s'utilitza el coeficient de distribució sòlid-líquid ( $K_d$ ), un paràmetre crucial i àmpliament utilitzat per a la construcció de models de predicció dels riscos potencials derivats d'un escenari de contaminació. Aquest paràmetre, però, està subjecte

Correspondència: Dídac Serraïma-López  
Universitat de Barcelona (UB). Departament d'Enginyeria Química i Química Analítica  
Facultat de Química. C. de Martí i Franquès, 1-11. 08028 Barcelona  
Tel.: +34 934 021 281  
A/e: [didac.serraïma@ub.edu](mailto:didac.serraïma@ub.edu)

a diverses fonts de variabilitat que, sovint, en comprometen la utilitat. Les fonts de variabilitat del paràmetre  $K_d$  no només inclouen el RN en qüestió i la seva possible especiació, sinó també les característiques de les fases sòlida i líquida del sòl, així com la metodologia utilitzada per a la seva quantificació [7] i l'origen del RN avaluat. La variabilitat dels valors de  $K_d$  presents a la literatura, especialment deguda a les diferents metodologies emprades per a la seva quantificació, dificulta l'elucidació de les propietats del sòl més rellevants amb vista a construir models de predicció del paràmetre  $K_d$  (RN).

Per aquest motiu, per tal de reduir la variabilitat experimental i amb l'objectiu d'esbrinar els mecanismes d'interacció del RN estudiat amb el sòl, en aquest treball s'han determinat els paràmetres  $K_d$  de U i de Po per a una col·lecció pròpia de sòls no contaminats amb propietats edàfiques molt contrastades i àmpliament caracteritzats, a fi de representar el màxim nombre d'escenaris possibles. Concretament, s'han determinat els paràmetres de  $K_d$  (RN) corresponents a la sorció del RN al sòl i, també, el paràmetre  $K_d$  (RN) obtingut en l'escenari invers, una desorció del RN recentment incorporat al sòl, per avaluar el grau de reversibilitat a curt termini del procés de sorció.

En el cas del poloni, es presenta un estudi de comparació de poblacions en què s'utilitzen tant dades pròpies experimentals com d'altres que s'han obtingut de l'escassa literatura disponible. Les diferents poblacions de  $K_d$  (Po) es representen per mitjà de l'ús de distribucions estadístiques de probabilitat, com són les funcions de probabilitat acumulada (CDF, de *cumulative distribution functions*) [8, 9]. A partir d'una comparació estadística de poblacions s'avalua l'efecte en la  $K_d$  (Po) de variables com el tipus de contaminació (comparació d'un escenari de sorció al sòl respecte d'un de desorció), l'origen del Po (comparació entre Po natiu i Po recentment incorporat) o el contingut de MO del sòl.

En el cas de l'urani, únicament es mostren dades de  $K_d$  (U) de sorció i de desorció pròpies, per tal de treballar amb una col·lecció de dades que no es vegi afectada per la gran variabilitat present a l'extensa literatura de dades en referència al paràmetre  $K_d$  (U). En primer lloc i de manera anàloga al Po, també es va dur a terme una comparació de les poblacions de sorció i desorció a través de l'ús de les CDF i dels tests estadístics. En segon lloc, fent ús d'eines quimiomètriques, com són l'anàlisi de components principals (PCA, de *principal component analysis*) i la regressió per mínims quadrats (PLS, de *partial*

*least squares*), es va dur a terme una anàlisi exploratòria de les dades de sorció en què es van classificar els sòls segons la textura i l'especiació majoritària, a més d'identificar les propietats del sòl que tenen un major efecte en la predicció del paràmetre  $K_d$  (U). Aquestes propietats rellevants van ser utilitzades posteriorment per a explorar correlacions univariants senzilles que expliquin alts percentatges de variància del paràmetre  $K_d$  (U). En estudis posteriors, aquests resultats s'utilitzaran per a la construcció de models paramètrics de predicció multivariants que permetin explicar percentatges més grans per a la predicció del paràmetre  $K_d$  (U).

## Metodologia

### *Experiments de sorció i de desorció*

La simulació d'escenaris ambientals es va dur a terme a escala de laboratori per mitjà d'experiments en *batch* de sorció, en què se simula la incorporació del RN al sòl, i d'experiments de desorció, en què se simula una lixiviació del RN des del sòl. Els experiments es van realitzar per a una col·lecció de trenta-un sòls prèviament caracteritzats en termes de fase sòlida (textura, contingut de MO i de carbonats, etc.) i de fase soluble (cations majoritaris, carboni orgànic dissolt –DOC, de *dissolved organic carbon*–, cations bescanviables, U natiu, ferro i alumini amorfs, etc.), i es van obtenir fins a una trentena de propietats caracteritzades. Paral·lelament, també es va utilitzar el programari Visual Minteq per tal de determinar un paràmetre clau com és l'espècie de U majoritària en solució per a cada sòl avaluat.

La seqüència experimental de sorció i desorció es pot veure esquematitzada a la figura 1. Es van posar en contacte 25 mL d'una solució de U o Po d'activitat coneguda amb 1 g de sòl. Una vegada assolit l'equilibri, al cap de vint-i-quatre hores d'agitació contínua, es va procedir a la separació de les fases sòlida i líquida per centrifugació i posterior filtratge a 5  $\mu\text{m}$ . D'una banda, es va quantificar l'activitat de RN en solució per a determinar el paràmetre de sorció. De l'altra, es va dur a terme l'assecat a 40 °C del sòl recentment contaminat per, després, afegir-hi 25 mL d'aigua i procedir d'una manera anàloga per a determinar el paràmetre de desorció del RN.

La quantificació dels RN a la fase líquida es va dur a terme per mitjà de la tècnica del centelleig líquid amb un equip Quantulus 1220 (Perkin Elmer). El mecanisme de funciona-

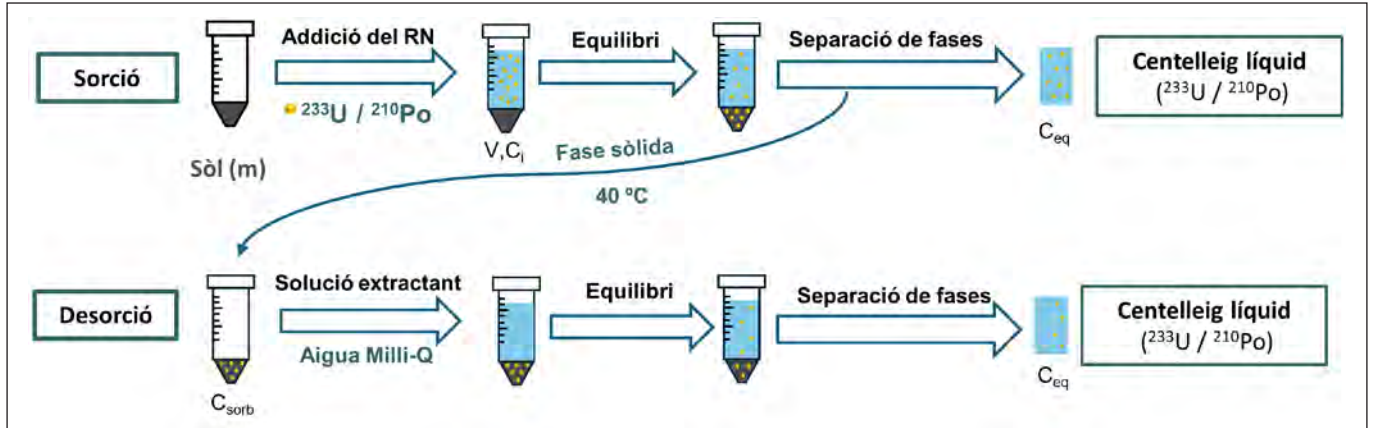


FIGURA 1. Seqüència experimental dels experiments de sorció i desorció. Elaboració pròpia.

ment d'aquesta tècnica òptica utilitzada principalment per a la determinació d'emissors beta, però també alfa, es troba representat a la figura 2. En un vial de centelleig es mesclen, en la proporció adequada, la mostra que s'ha de quantificar amb el còctel de centelleig, consistent en una emulsió d'un solvent aromàtic i soluts amb capacitat fluorescent. Per a cada emissió radioactiva, es produeix una transmissió de l'energia entre el solvent aromàtic i els soluts fluorescents, que, finalment, generen un feix de fotons proporcional a l'energia de l'emissió produïda i d'una longitud d'ona adequada per a ser detectada pel fotomultiplicador. Cadascun d'aquests feixos de fotons és classificat en canals d'energia, a partir d'un calibratge, i s'obté un espectre de taxa de comptatge, la integració del qual correspon a l'activitat mesurada del RN [10].

A partir de la quantificació de l'activitat del RN en solució a l'equilibri, es determina el paràmetre  $K_d$  (U) de sorció per mitjà de l'expressió següent:

$$K_d [Lkg^{-1}] = \frac{C_{sorb}}{C_{eq}} = \frac{(C_i - C_{eq}) * \frac{V}{m}}{C_{eq}}$$

on  $C_{sorb}$  representa la concentració de RN sorbida al sòl;  $C_i$ , la concentració inicial afegida;  $C_{eq}$ , la concentració quantificada a la fase líquida en equilibri;  $V$ , el volum de solució inicial, i  $m$ , la massa de sòl.

Posteriorment i d'una manera anàloga, es determina el paràmetre  $K_d$  de desorció a partir de la  $C_{sorb}$  del sòlid i la  $C_{eq}$  després de la desorció.

### Anàlisi de les dades

A partir dels paràmetres  $K_d$  obtinguts de forma experimental, juntament amb dades obtingudes a través d'una revisió crítica de la literatura, es va procedir a la construcció de bases de dades per a cadascun dels dos RN d'interès.

En el cas del U, posteriorment es va dur a terme una anàlisi exploratòria amb vista a la classificació segons la textura i l'especiació de U en cada sòl mitjançant la PCA. A més, es va fer ús d'una altra eina quimiomètrica com és la regressió per PLS per tal d'identificar les propietats més rellevants per a la predicció del paràmetre  $K_d$  (U).

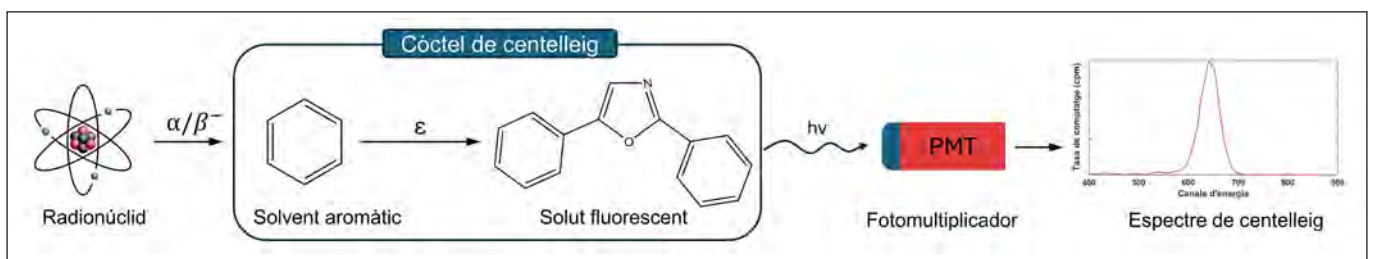


FIGURA 2. Principi del centelleig líquid per a la determinació d'emissors alfa i beta. Elaboració pròpia.

Aquestes propietats rellevants van ser utilitzades posteriorment per a explorar correlacions univariants senzilles que expliquin alts percentatges de variància del paràmetre  $K_d$  (U). Finalment, tant en el cas del U com del Po, es va fer ús de distribucions estadístiques de probabilitat, com són les CDF, per tal de representar les sèries de dades del paràmetre  $K_d$  (RN) en forma logarítmica. Aquestes representacions de  $K_d$  (RN) es van dur a terme per a proposar valors més probables, corresponents al percentil 50 de la CDF, segons l'escenari avaluat. L'avaluació de la possible existència de diferències estadístiques entre poblacions es va fer per mitjà de la prova de les diferències mínimes significatives de Fisher (FLSD, de *Fisher's least significant differences*).

## Resultats i discussió

### El cas del poloni

El Po és un element que, tot i tenir una radiotoxicitat més alta que la del U [11], es troba molt menys present a la literatura pel que fa a l'estudi de la seva interacció amb sòls. En aquest treball es va dur a terme una anàlisi preliminar a través de l'ús de CDF per avaluar l'efecte d'algunes variables en el valor més probable de  $K_d$  (Po) proposat. Com es pot observar a la figura 3, en primer lloc, es va avaluar, amb dades pròpies, l'efecte del tipus de contaminació, diferenciant un escenari de sorció respecte d'un de desorció de Po recentment incorporat.

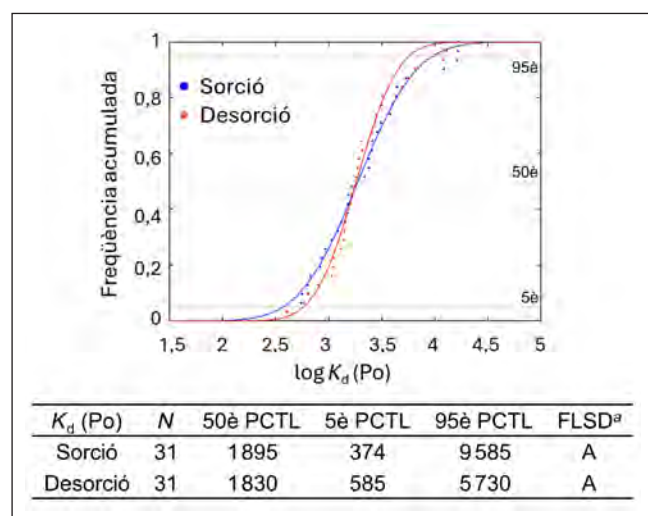


FIGURA 3. CDF de les poblacions de dades pròpies de  $K_d$  (Po) de sorció i desorció.

$N$  = nombre d'observacions, PCTL = percentil en  $L \cdot kg^{-1}$ . Elaboració pròpia.

<sup>a</sup> L'ús de lletres diferents entre els conjunts de dades indica diferències estadísticament significatives segons la prova de FLSD.

A partir de les dades derivades de les CDF es pot observar que, segons la prova de FLSD, no existeixen diferències estadísticament significatives entre la població de dades de sorció i les de desorció de Po recentment incorporat; s'obté un valor més probable de 1895 i 1830  $L \cdot kg^{-1}$ , respectivament.

Aquest fet suggereix que el Po no presenta un comportament diferent en la seva interacció de sorció al sòl respecte de la seva desorció d'un sòl recentment contaminat. Per tant, un mateix paràmetre  $K_d$  (Po) podria ser utilitzat en qualsevol dels dos escenaris avaluats.

En segon lloc, es van incloure valors de la literatura per tal d'avaluar l'efecte de l'origen de la contaminació del Po analitzat. En aquest cas, a la figura 4 sí que s'observa un efecte de l'origen del Po, ja que hi ha diferències significatives entre poblacions, amb valors inferiors pel que fa a les dades de  $K_d$  (Po) corresponents a escenaris de contaminació recent, respecte de les dades de  $K_d$  (Po) obtingudes d'escenaris de contaminació de Po natiu, en què el Po es pot trobar més incorporat al sòl i, per tant, menys accessible.

Finalment, a partir de les dades de  $K_d$  (Po) recentment incorporat i de Po natiu, es va analitzar l'efecte del contingut de MO del sòl. En aquest cas es van considerar sòls orgànics tots aquells amb un contingut de MO superior al 10%, represen-

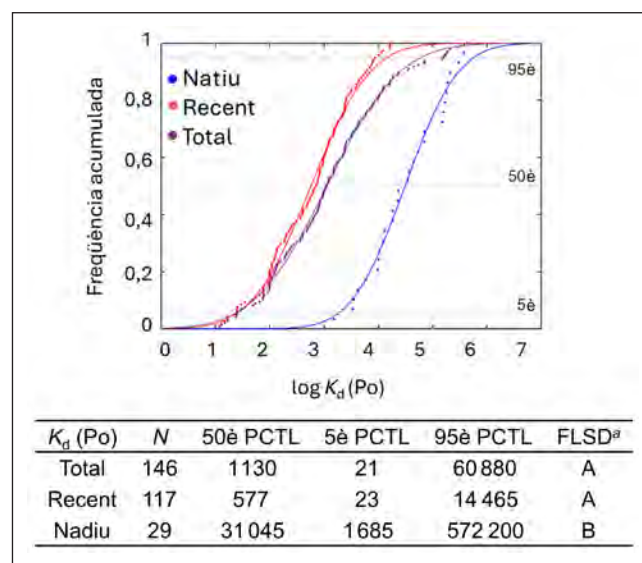


FIGURA 4. CDF de les poblacions de dades pròpies i de la literatura de  $K_d$  (Po)

incloent-hi escenaris de contaminació recent i de Po natiu.  $N$  = nombre d'observacions, PCTL = percentil en  $L \cdot kg^{-1}$ . Elaboració pròpia.

<sup>a</sup> L'ús de lletres diferents entre els conjunts de dades indica diferències estadísticament significatives segons la prova de FLSD.

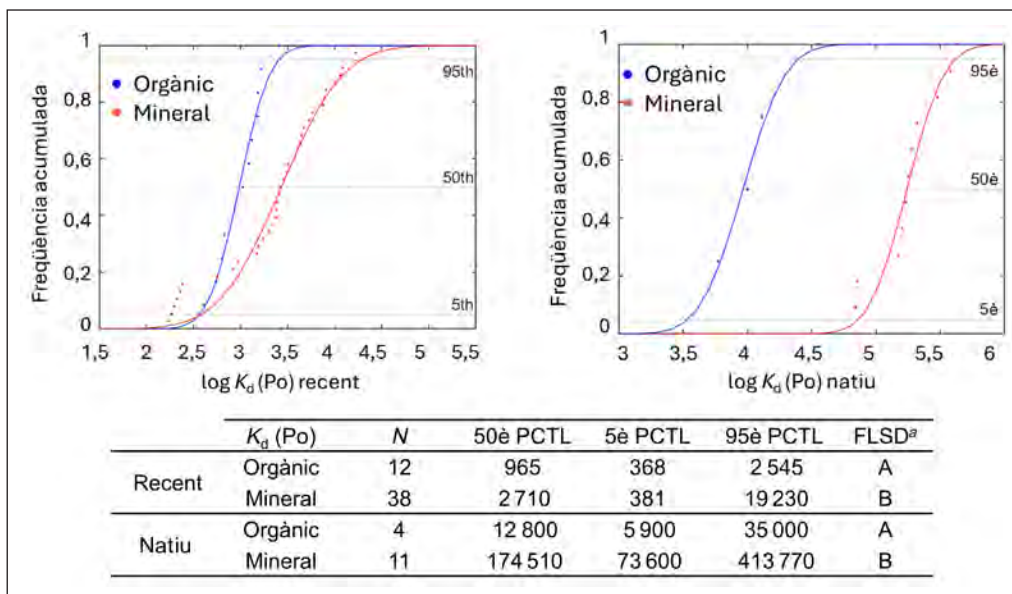


FIGURA 5. CDF de les poblacions de dades de  $K_d$  (Po) corresponents a escenaris de contaminació recent (esquerra) i Po natiu (dreta).  $N$  = nombre d'observacions, PCTL = percentil en  $L \cdot kg^{-1}$ . Elaboració pròpia.

<sup>a</sup> L'ús de lletres diferents entre els conjunts de dades indica diferències estadísticament significatives segons la prova de FLSD.

tats en forma de CDF a la figura 5. Com es pot observar a la taula de dades de la mateixa figura, també es van trobar diferències estadísticament significatives entre les dues poblacions en tots dos escenaris.

Tant les poblacions de dades de contaminació recent com les de Po natiu suggereixen que, en cas d'avaluar un sòl orgànic, el paràmetre de  $K_d$  (Po) és menor que quan s'avalua un sòl mineral, i és en un escenari de contaminació de Po natiu on s'observa una major diferència i, en conseqüència, un major efecte del contingut de MO del sòl. Per tant, el contingut de MO també és una variable rellevant que serà utilitzada en un futur per a la construcció de models paramètrics de predicció de  $K_d$  (Po).

### El cas de l'urani

#### Comparació de les poblacions de $K_d$ (U) de sorció i de desorció

A partir de les dades pròpies de  $K_d$  (U) de sorció i desorció, primerament, es va dur a terme una comparació entre les dues poblacions de manera anàloga a la feta per a les poblacions de  $K_d$  (Po). En el cas del U, a causa de l'elevada variabilitat de les dades de la literatura, és difícil de concloure si un paràmetre  $K_d$  (U) de sorció serveix per a descriure també el procés invers, de desorció, del U recentment incorporat. Aprofitant la

reduïda variabilitat experimental d'aquest estudi, es va optar per comparar les dues poblacions de paràmetres  $K_d$  (U), sorció i desorció, fent ús de les CDF. A la figura 6 es mostren les dades experimentals i les CDF ajustades obtingudes.

Els valors de  $K_d$  (U) més probables de cada població mostren diferències notables que es confirmen estadísticament amb la prova de FLSD. Així doncs, aquest estudi va servir per a confir-

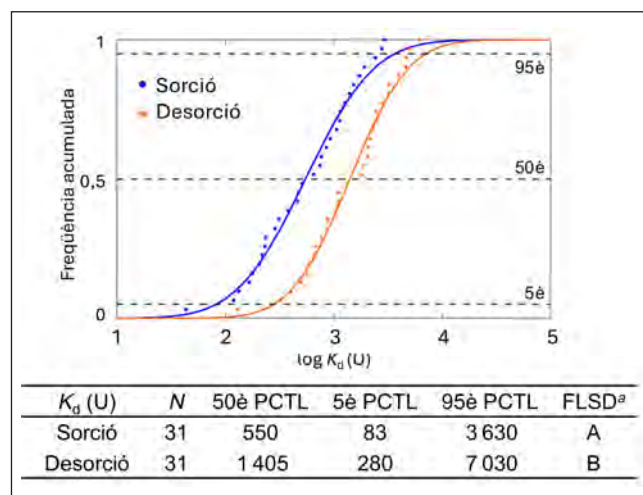


FIGURA 6. Representació de les CDF de les poblacions de sorció i desorció de  $K_d$  (U).  $N$  = nombre d'observacions, PCTL = percentil en  $L \cdot kg^{-1}$ . Elaboració pròpia.

<sup>a</sup> L'ús de lletres diferents entre els conjunts de dades indica diferències estadísticament significatives segons la prova de FLSD.

mar que els paràmetres de sorció i de desorció de U recentment incorporat presenten valors diferents de  $K_d(U)$  amb un factor d'histèresi entorn de 2,5. Per tant, els resultats suggereixen la necessitat d'avaluar amb paràmetres específics cadascun dels dos escenaris o, com a mínim, d'utilitzar un factor corrector.

#### *Anàlisi exploratòria dels sòls: classificació segons la textura i l'especiació*

A partir dels paràmetres obtinguts a través dels experiments de sorció de U es va dur a terme una anàlisi exploratòria classificatòria fent ús de l'eina del PCA. A la figura 7 es mostren els gràfics de *scores* corresponents a la classificació de les dades en funció de la textura del sòl i el contingut de MO d'una banda, i de l'altra, en funció de l'espècie de U majoritària present en solució una vegada assolit l'equilibri.

Primerament, es pot observar que la MO del sòl té un paper important, ja que els sòls amb un contingut de MO apareixen altament agrupats en el gràfic de *scores*. Aquest fet es va utilitzar per a fixar un criteri que permetés definir els sòls orgànics, segons el qual un sòl es considera orgànic si supera un contingut de MO del 15%.

D'altra banda, en el gràfic de *scores* de la figura 7 (dreta) s'observa la classificació dels sòls segons l'espècie majoritària en solució en el punt d'equilibri. Fent ús del programari de simulacions d'escenaris ambientals, Visual Minteq, es van definir dues espècies majoritàries per a pràcticament tots els sòls,

$Ca_2UO_2(CO_3)_3$  i uranil lligat a àcids fúlvics ( $/FA_2UO_2$ ), i les respectives espècies derivades,  $CaUO_2(CO_3)_3^{2-}$  i  $/FAUO_2^+$ . La diferent especiació va demostrar ser molt dependent del pH i del DOC del sòl, com es podia esperar. Aquest fet concorda amb estudis previs que posen de manifest la dificultat en la predicció del comportament del U en tot l'interval de pH degut a la presència de diferents espècies i, en conseqüència, l'ús de models focalitzats únicament en una regió específica de pH [12]. L'ús de simulacions obre la porta a dur a terme una classificació per espècie de U i no tant per una propietat correlacionada amb l'especiació, com és el pH, per tal de construir en un futur models de predicció més acurats.

#### *Identificació de propietats rellevants per a la predicció de $K_d(U)$*

Amb l'objectiu d'identificar les propietats més rellevants a l'hora de predir el paràmetre  $K_d(U)$  es va fer ús de l'eina quimiomètrica PLS. Com que les propietats caracteritzades superaven la trentena, primerament es va dur a terme un cribatge a través del gràfic de *loadings* de PCA per reduir el nombre de variables introduïdes a PLS. Es van descartar les propietats que explicaven informació repetida o que directament no afectaven el paràmetre  $K_d(U)$ , fet que indicava una posició de noranta graus respecte del paràmetre  $K_d(U)$ .

Posteriorment, es va dur a terme l'anàlisi de variables més importants per a la predicció (VIP), tal com es pot observar a la figura 8, i es van identificar com a més rellevants aquelles

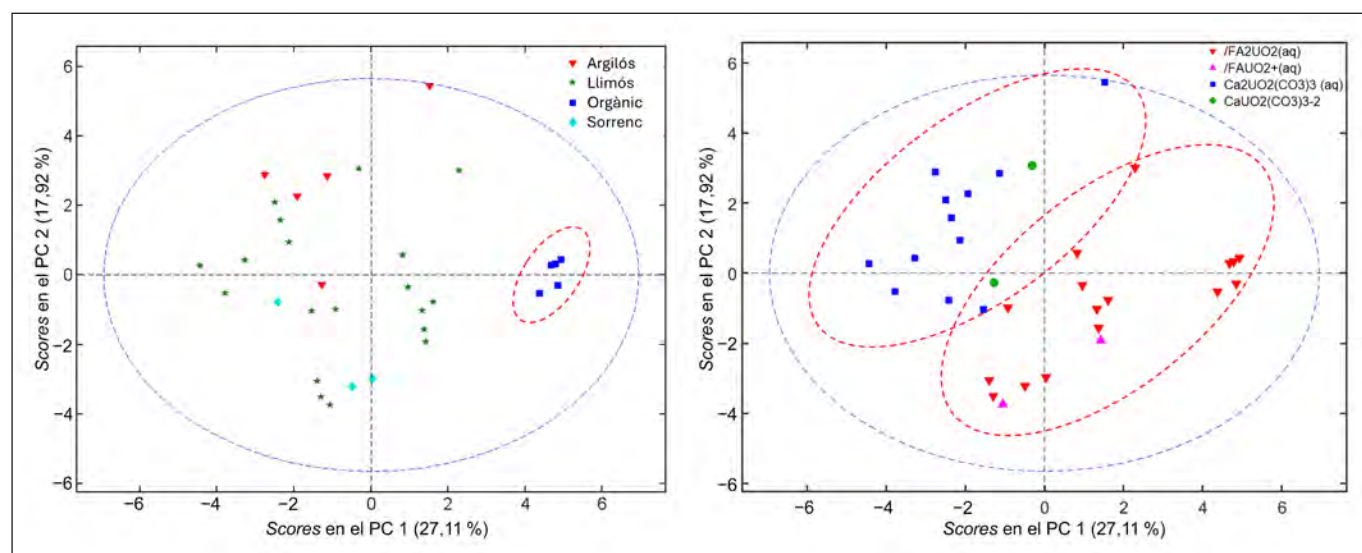


FIGURA 7. Classificació dels sòls per textura i contingut de MO (esquerra) i segons l'espècie de U majoritària en solució (dreta). Elaboració pròpia.

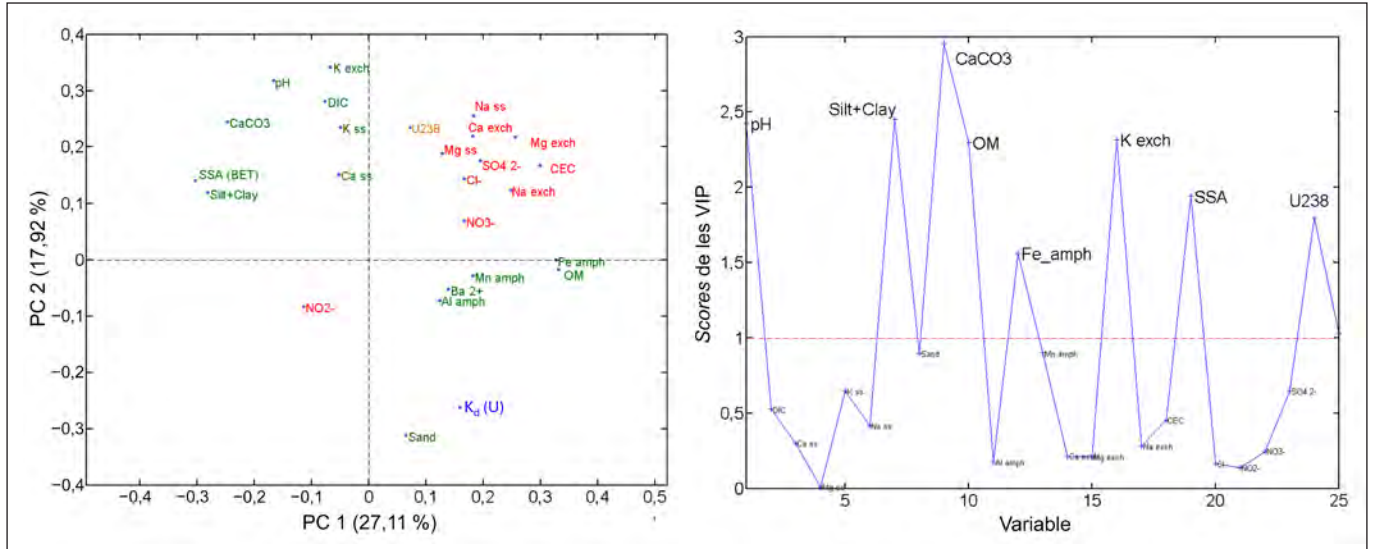


FIGURA 8. Representació del gràfic de loadings de PCA (esquerra) i de les variables més importants per a la predicció amb PLS (dreta). Elaboració pròpia.

propietats de sòl que mostraven valors de VIP superiors a 1. Es van identificar, d'una banda, propietats àmpliament estudiades pel seu efecte en la sorció del U en sòls, com poden ser el pH o el contingut de carbonats i, de l'altra, propietats menys reconegudes habitualment, com poden ser el contingut de ferro amorf o de U natiu soluble del sòl. Aquestes variables són les candidates a presentar una forta correlació amb el paràmetre  $K_d(U)$  i a ser utilitzades en models univariants i multivariants de predicció de  $K_d(U)$  en estudis futurs.

#### Correlacions del paràmetre $K_d(U)$ amb propietats rellevants

La importància d'algunes variables identificades com a rellevants en la secció anterior es va corroborar a través d'una exploració preliminar en què es van identificar correlacions univariants significatives a l'hora d'explicar la variància del paràmetre  $K_d(U)$ . A la figura 9 es pot observar el comportament esperat en forma de campana del paràmetre  $K_d(U)$  en funció del pH [13]. Aquest comportament es deu a la diferent especiació del U a cada regió de pH. La sorció a la regió de pH més àcida, on predomina l'espècie uranil ( $UO_2^{2+}$ ), augmenta per l'increment de llocs de sorció fins a assolir el màxim de sorció entre pH 5 i pH 7. A pH més elevats predominen espècies solubles de carbonats amb poca afinitat per les fases minerals, fet que provoca una disminució de la capacitat de sorció.

Tot i ser un comportament àmpliament observat, o bé per la gran variabilitat de les dades o bé pel fet de disposar d'una mostra poc representativa, prèviament no s'havia optat mai

per intentar predir el comportament del U de forma simultània per a tot l'interval de pH a partir d'una funció quadràtica. En aquest treball, es proposa aquesta funció per tal d'explicar el comportament tant de sorció com de desorció de U recentment incorporat, per a tot valor de pH. D'aquesta manera es va arribar a explicar un 72% de la variància per a la sorció i fins a un 75% per a la correlació amb la desorció, i s'assegura la rellevància estadística dels termes de les variables amb valors de  $p < 0,05$ .

D'altra banda, a la figura 10 s'observa una bona correlació del paràmetre  $K_d(U)$  amb una variable poc utilitzada habitualment com és el DOC per a la regió de pH menor a 5. Aquesta

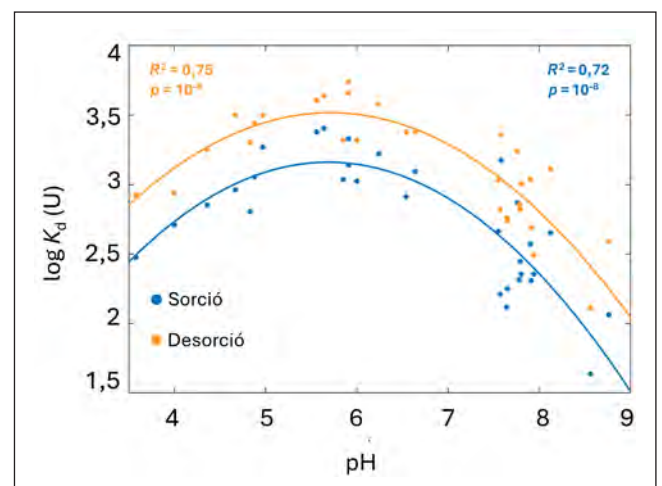


FIGURA 9. Funció quadràtica de correlació de  $K_d(U)$  amb pH. Elaboració pròpia.

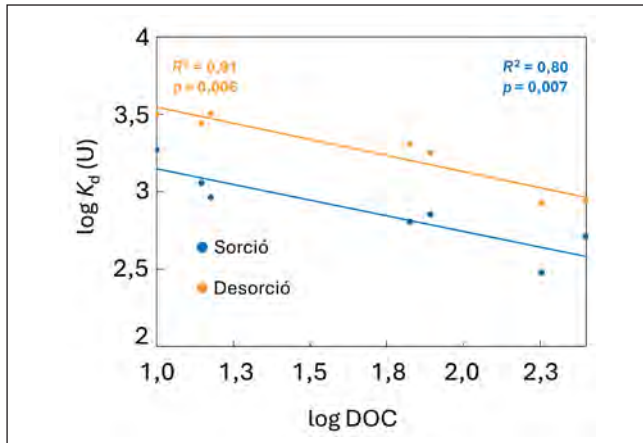


FIGURA 10. Correlació univariant amb DOC per a l'interval de pH < 5. Elaboració pròpia.

correlació és determinada per l'especiació d'aquesta regió de pH on l'espècie majoritària consisteix precisament en l'uranil lligat a àcids fúlvics, que suposen una gran contribució del total de DOC. Amb aquesta correlació es va explicar un 91 % de la variància del paràmetre  $K_d$  (U) de sorció i fins a un 80 % en el cas de la desorció.

## Conclusions

Aquest estudi ha ampliat el coneixement sobre la interacció del U i el Po en sòls. En el cas del Po, els resultats suggereixen que, en un escenari de contaminació recent, la sorció i la desorció es poden avaluar amb un paràmetre  $K_d$  únic, tot i que cal considerar el contingut de MO del sòl. També cal diferenciar entre contaminació recent i de Po natiu, on el Po podria estar més integrat al sòl. Es preveu que en un futur es faran estudis que aprofundiran en el comportament d'aquest RN, incloent-hi anàlisis quimiomètriques similars a les fetes amb el U.

En el cas del U, s'han trobat diferències significatives entre les poblacions de sorció i desorció, la qual cosa indica que cal diferenciar entre escenaris d'incorporació de U i de desorció de U recentment incorporat. A més, s'ha destacat la importància de la MO i l'especiació mitjançant una PCA. A través de l'anàlisi de VIP en PLS, s'han identificat propietats importants per a predir el paràmetre de sorció  $K_d$  (U), com el pH, el contingut de carbonats, el ferro amorf i el U natiu soluble del sòl. S'ha proposat una funció quadràtica amb el pH que explica fins al 75% de la variància de la  $K_d$  (U), i una correlació univariant amb el DOC per a sòls de pH < 5 que explica fins al 91 %. En

futurs estudis es pretén aprofundir en la cerca exhaustiva de models paramètrics més complexos amb les variables identificades per a explicar millor el paràmetre  $K_d$  (U).

## Agraïments

Aquest treball s'ha realitzat en el marc d'un grup de recerca consolidat de la Generalitat de Catalunya (2021 SGR 01342) i forma part del projecte PID2020-114551RB-I00, finançat pel Ministeri de Ciència, Innovació i Universitats, MCIN/AEI/10.13039/501100011033, i del projecte europeu RadoNorm, finançat per l'Euratom Research and Training Programme 2019-2020, amb codi 900009. Els autors de l'estudi també volen agrair a la Societat Catalana de Química l'oportunitat de presentar aquest treball, premiat en la XIII Trobada de Joves Investigadors dels Països Catalans.

## Referències i altres fonts

- [1] ICRP. «Radiological protection from naturally occurring radioactive material (NORM) in industrial processes». *Ann. ICRP* (2019). DOI: 10.1177/0146645319874589.
- [2] MICHALIK, B.; DVORZHAK, A.; PEREIRA, R.; LOURENÇO, J.; HAANES, H.; DI CARLO, C.; NUCCETELLI, C.; VENOSO, G.; LEONARDI, F.; TREVISI, R.; TROTTI, F.; UGOLINI, R.; PANNESCOUCHE, L.; BLANCHART, P.; PEREZ-SANCHEZ, D.; REAL, A.; ESCRIBANO, A.; FEVRIER, L.; KALLIO, A.; SKIPPERUD, L.; JEROME, S. M.; MRDAKOVIC POPIC, J. «A methodology for the systematic identification of naturally occurring radioactive materials (NORM)». *Sci. Total Environ.*, 881 (juliol 2023). DOI: 10.1016/j.scitotenv.2023.163324.
- [3] POPIC, J. M.; URSO, L.; MICHALIK, B. «Assessing the exposure situations with naturally occurring radioactive materials across European countries by means of the e-NORM survey». *Sci. Total Environ.*, 905 (desembre 2023). DOI: 10.1016/j.scitotenv.2023.167065.
- [4] MICHALIK, B. «NORM impacts on the environment: An approach to complete environmental risk assessment using the example of areas contaminated due to mining activity». *Appl. Radiat. Isot.*, 66 (11) (novembre 2008), p. 1661-1665. DOI: 10.1016/j.apradiso.2008.01.025.
- [5] GIL-GARCÍA, C. J.; RIGOL, A.; RAURET, G.; VIDAL, M. «Radionuclide sorption-desorption pattern in soils from Spain». *Appl. Radiat. Isot.*, 66 (2) (febrer 2008), p. 126-138. DOI: 10.1016/J.APRADISO.2007.07.032.



- [6] VANDENHOVE, H.; HEES, M. van; WOUTERS, K.; WANNIJN, J. «Can we predict uranium bioavailability based on soil parameters?». Part 1: «Effect of soil parameters on soil solution uranium concentration». *J. Env. Pol.*, 145 (2) (gener 2007), p. 587-595. DOI: 10.1016/j.envpol.2006.04.011.
- [7] ALDABA, D.; RIGOL, A.; VIDAL, M. «Diffusion experiments for estimating radiocesium and radiostrontium sorption in unsaturated soils from Spain: Comparison with batch sorption data». *J. Hazard. Mater.*, 181 (1-3) (setembre 2010), p. 1072-1079. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2010.05.124.
- [8] SIMON-CORNU, M.; BEAUGELIN-SEILLER, K.; BOYER, P.; CALMON, P.; GARCIA-SANCHEZ, L.; MOURLON, C.; NICOLAUD, V.; SY, M.; GONZE, M. A. «Evaluating variability and uncertainty in radiological impact assessment using SYMBIOSE». *J. Environ. Radioact.*, 139 (gener 2015), p. 91-102. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2014.09.014.
- [9] RAMÍREZ-GUINART, O.; KAPLAN, D.; RIGOL, A.; VIDAL, M. «Deriving probabilistic soil distribution coefficients (K<sub>d</sub>)». Part 1: «General approach to decreasing and describing variability and example using uranium K<sub>d</sub> values». *J. Environ. Radioact.*, 222 (octubre 2020). DOI: 10.1016/j.jenvrad.2020.106362.
- [10] TARANCÓN, A.; BAGÁN, H.; GARCÍA, J. F. «Plastic scintillators and related analytical procedures for radionuclide analysis». *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 314 (2) (novembre 2017), p. 555-572. DOI: 10.1007/s10967-017-5494-5.
- [11] ANSOBORLO, E.; BERARD, P.; AUWER, C. DEN; LEGGETT, R.; MENE-TRIER, F.; YOUNES, A.; MONTAVON, G.; MOISY, P. «Review of chemical and radiotoxicological properties of polonium for internal contamination purposes». *Chem. Res. Toxicol.*, 25 (8) (20 agost 2012), p. 1551-1564. DOI: 10.1021/tx300072w.
- [12] ECHEVARRIA, G.; SHEPPARD, M. I.; MOREL, J. L. «Effect of pH on the sorption of uranium in soils». *J. Environ. Radioact.*, 53 (2) (2001), p. 257-264. DOI: 10.1016/S0265-931X(00)00116-8.
- [13] SHEPPARD, S. C. «Robust prediction of K<sub>d</sub> from soil properties for environmental assessment». *Hum. Ecol. Risk Assess.*, 17 (1) (gener 2011), p. 263-279. DOI: 10.1080/10807039.2011.538641.



D. Serraïma-López



M. Vidal



A. Rigol

**Dídac Serraïma-López** és graduat en química i màster en química analítica per la Universitat de Barcelona. Actualment està cursant els estudis de doctorat a la mateixa universitat dins del programa de doctorat en química analítica i medi ambient i des del grup Qüestram-R del Departament d'Enginyeria Química i Química Analítica. Des de l'any 2019, també exerceix com a professor associat a la secció de Química Analítica del mateix departament.

**Miquel Vidal** és catedràtic de química analítica al Departament d'Enginyeria Química i Química Analítica de la Universitat de Barcelona (UB) des del 2011. Els seus interessos científics són elucidar els mecanismes que controlen la interacció de contaminants en matrius d'interès ambiental, col·laborar en la millora de la predicció de l'impacte ambiental d'un episodi de contaminació mitjançant la parametrització dels processos clau que governen la mobilitat de contaminants i dissenyar accions de remediació d'àrees contaminades. És l'investigador principal de la UB del projecte «Towards effective radiation protection based on improved scientific evidence and social considerations - focus on radon and NORM – RadoNorm».

**Anna Rigol** és professora titular del Departament d'Enginyeria Química i Química Analítica de la Universitat de Barcelona (UB) des de l'any 2003. La seva experiència se centra en el desenvolupament i l'aplicació de mètodes analítics per a estudiar el comportament dels contaminants en el sistema sòl-aigua, així com en la investigació de la reutilització de materials com a sorbents per a disminuir l'impacte dels contaminants a les zones contaminades. És membre de la Societat Catalana de Química, de la Societat Espanyola de Protecció Radiològica i de l'Institut de Recerca de l'Aigua de la UB.