

ESTUDIO DE TASAS DE SEDIMENTACION Y DATACION DE SEDIMENTOS EN LA BAHIA DE SANTANDER (ESPAÑA)

J. Soto^{*1}, J. Gómez*, O. Díaz**, A. Gelen**

* Universidad de Cantabria. Santander, España.

** Instituto Superior de Ciencias y Tecnología Nucleares. La Habana, Cuba.

RESUMEN

En el presente trabajo se analizaron dos cortes del sedimento de la Bahía de Santander en España. El corte se hizo por centímetro y se mide utilizando el trazador radiactivo para determinar el Pb-210 y la concentración asociada al Ra-226. Se calculó la edad de las capas de sedimento y sus componentes metales. El incremento de la sedimentación en los últimos cien años es de 0.08 cm a 0.30 cm.

ABSTRACT

Two sediment cores from the Santander Bay (Spain) has been studied for dating purposes. The cores are cut off every centimeter and measured by a germanium low background gamma spectrometry system for determining the Pb-210 and the associate Ra-226 concentrations. Age profiles and sedimentation rates of the cores were calculated from the constant rate of supply model. Age profiles of the sediment constructed from the radionuclide measurements were used to determine historical trends of organic compounds and contaminant metals. The sedimentation rates calculated are increasing along the century with values from 0.08 cm/y to 0.30 cm/y. The evolution of sedimentation rates was in good agreement with the filling periods happened the last 100 years.

INTRODUCCION

La bahía de Santander (España) es un ecosistema complejo que posee como uno de sus principales problemas el vertido de sustancias de origen industrial y urbano. La deposición de vertidos puede producir una contaminación permanente de los fondos de la bahía que induzca alteraciones en las cadenas tróficas afectando a plantas y animales. En este sentido, la datación de los sedimentos depositados posee un gran interés para poder correlacionar la edad de cada capa con su contaminación química e identificar la evolución en el tiempo de cada tipo de vertido.

Calculables a partir de las edades de las capas, las tasas de sedimentación reflejan la acumulación de sustancias, y entre ellas las de origen industrial o urbano, y de qué manera se está modificando el relieve del fondo de la bahía. En el caso de que existan procesos antrópicos, éstos se añaden a los que ocurren por causas naturales acelerando las modificaciones del fondo y pudiendo hacer que se produzcan cambios en los flujos de agua, que influyen en procesos como el de erosión de playas.

El estudio de tasas de sedimentación y datación de sedimentos se realiza desde hace años usando isótopos radiactivos naturales y artificiales presentes

en el ambiente. Para lapsos de tiempo correspondientes a las últimas decenas de años, los de mayor influencia del hombre, los métodos empleados son los basados en el Cs-137 y en el Pb-210. En este trabajo hemos estudiado las tasas de sedimentación existentes en un conjunto de puntos de la bahía de Santander y calculado la edad de cada una de sus capas utilizando el trazador radiactivo Pb-210.

METODO DE DATACION POR Pb-210

El Pb-210 es un isótopo radiactivo natural, con periodo de semidesintegración de 22.3 años, perteneciente a la serie del U-238. Dentro de ésta se encuentra el gas noble radón (Rn-222) que, debido a su carácter gaseoso, puede escapar de las rocas y suelos de la corteza terrestre donde se forma por desintegración del Ra-226. Una vez en el aire, el radón decae con su periodo de semidesintegración de 3.8 días dando lugar a sus descendientes. Entre ellos se encuentra el Pb-210 que se deposita continuamente sobre la superficie del suelo.

El Pb-210 precipitado se puede encontrar en muestras de sedimentos a la vez que otra fracción del mismo isótopo producido en ellos por la desintegración del Ra-226 presente en el material. Este último estará en equilibrio secular con el Ra-226

¹ sotoj@galeno.medi.unican.es

y decaerá con la semivida de éste. A esta fracción se la conoce como Pb-210 en equilibrio mientras que a la fracción precipitacional se la conoce como Pb-210 en exceso. A partir de la concentración de Pb-210 en exceso en un perfil de sedimento se puede conocer la tasa de sedimentación y datar las diferentes capas del mismo, [1, 2].

La concentración de Pb-210 en equilibrio se puede conocer de la concentración total de Pb-210. Al decaer el Pb-210 en exceso con su propio período, la fracción deposicional habrá decaído completamente a una determinada profundidad, estando todo el Pb-210 en equilibrio con el Ra-226. A partir de esta zona la concentración de Pb-210 será prácticamente constante. Sin embargo, es posible que la concentración de Ra-226 varíe de unas capas a otras del sedimento, por lo que el valor constante de Pb-210 de las últimas capas no corresponderá a la concentración de Pb-210 en equilibrio y, por ello, es conveniente realizar una determinación independiente del contenido en Ra-226 en algunas capas del sedimento, [3,4].

Los modelos utilizados para el cálculo de tasas de sedimentación y de edades de las distintas capas del sedimento son, principalmente, el C.I.C. y el C.R.S.

El modelo C.I.C. (Constant Initial Concentration), [5], parte de la hipótesis de la constancia de la concentración inicial en cada capa de sedimento. Si llamamos $C(0)$ a esta concentración podemos calcular, a partir del valor actual medido C_i en cada capa i del sedimento, la edad de la misma:

$$C_i = C(0) \exp \{-I \cdot t_i\}$$

donde I es la constante de desintegración del Pb-210, $I = \ln 2 / 22.3 \text{ años}^{-1}$, y despejando

$$t_i = (1/I) \ln [C(0) / C_i]$$

A la vista de las ecuaciones anteriores es inmediato concluir que la aplicación del modelo C.I.C. a un sedimento exige que el perfil de la concentración de Pb-210 en exceso sea monótonamente decreciente, [6,7].

El modelo C.R.S. (Constant Rate of Supply) parte de la suposición de que el flujo de Pb-210 en exceso a los sedimentos es constante durante la formación de éstos, sin poner restricciones a la velocidad de sedimentación, [8,9]. Debido a ello, la forma del perfil de concentraciones de Pb-210 en exceso no tiene por que ser monótonamente decreciente. Al mantenerse constante el aporte de esta fracción al sedimento una disminución en la velocidad de sedimentación se verá reflejada en un aumento de la concentración de Pb-210 en exceso.

El valor de la concentración por unidad de superficie de Pb-210 en exceso desde la superficie hasta el espesor másico m (que corresponderá a

una profundidad z), que llamaremos $A(m)$, será la integral del flujo de éste sobre el tiempo transcurrido desde la formación de la capa en cuestión hasta el momento del muestreo. Expresado matemáticamente:

$$A(m) = \int_0^m C(m) dm = \int_0^t F \cdot e^{-I t} dt$$

El valor de $A(m)$ se calcula de las concentraciones de Pb-210 en exceso del sedimento como:

$$A(m_i) = \sum_0^n C_i d_i e_i$$

donde C_i , d_i y e_i son la concentración por unidad de masa, la densidad y el espesor de la capa i respectivamente, y n es el número de capas situadas por encima de la que queremos datar.

Considerando la totalidad de del sedimento,

$$A(\infty) = \int_0^\infty C(m) dm = \int_0^\infty F \cdot e^{-I t} dt = F/I$$

A partir de estas ecuaciones se obtiene la edad de una capa determinada:

$$t = (1/I) \ln [A(\infty) / (A(\infty) - A(m))]$$

Para calcular los diferentes $A(m)$ es necesario conocer la concentración de Pb-210 en todas las capas del sedimento, así como sus densidades.

MUESTREO Y MEDIDA DE SEDIMENTOS

Para el estudio de sedimentos se han recogido muestras en dos puntos, mencionados como puntos 4 y 9, situados en la ría de Astillero y en la del Cubas, en lugares que afloran durante mareas bajas importantes. La recogida de muestras se realiza en tubos de plástico cilíndricos de 60 cm de longitud y 12 cm de diámetro. Las muestras se guardan en frigorífico hasta su preparación.

La preparación de las muestras se realiza dividiendo cada una de ellas en dos partes según un plano longitudinal. Con las muestras así divididas se fotografían para conocer la posible existencia de estratificación. Con el mismo propósito se han realizado radiografías de las muestras una vez ensayado diferentes condiciones de miliamperaje y voltaje del tubo de rayos X. A continuación cada muestra se marca cada centímetro y se corta según capas de este espesor. De las muestras originales se obtuvieron de esta manera 40 muestras del punto 4 y 49 muestras del punto 9, correspondientes a las distintas profundidades desde la superficie. Las muestras de punto se numeran y se secan en estufa durante 24 horas a 110°C. Después se muelen, se tamizan y se envasan en recipientes de plástico de 100 cm³. Los recipientes son botes cilíndricos de 6 cm de diámetro y 3 cm de altura que se cierran herméticamente una vez llenados. Se normaliza la

preparación de muestras poniendo en cada recipiente una cantidad de 50 g.

Las muestras preparadas se almacenan durante 30 días para que se establezca el equilibrio radiactivo entre el Ra-226, el Rn-222 y los descendientes de vida media corta de este último. Las muestras de sedimento se miden por espectrometría gamma, [10,11], utilizando un detector de semiconductor de Ge HP marca Canberra de configuración vertical. El detector está unido a un recipiente con nitrógeno líquido mediante un dedo frío y situado en el interior de un castillete de hierro de baja radiactividad de 10 cm de espesor para disminuir la radiación externa. El detector se encuentra unido a una cadena electrónica Canberra compuesta por una fuente de alimentación, un preamplificador y un amplificador. Las señales procedentes de ésta son recogidas por un analizador multicanal Accuspec con tarjeta para ordenador. La cadena de espectrometría se encuentra en el laboratorio de Física Médica que se mantiene a una temperatura constante de 17°C.

La medida de cada muestra preparada se realiza durante un intervalo de tiempo de 24 horas. A partir del recuento se obtiene el espectro de la muestra donde aparecen los fotopicos de los elementos radiactivos emisores gamma presentes. Para cada una de las muestras se consideran las siguientes energías de los fotopicos correspondientes a los elementos que se mencionan: 0.047 Mev (Pb-210); 0.063 Mev (Th-234); 0.186 Mev (Ra-226); 0.352 Mev (Pb-214); 0.610 Mev (Bi-214); 0.662 Mev (Cs-137); 0.911 Mev (Ac-228); 1.460 Mev (K-40); 2.614 Mev (Tl-208).

Para determinar la eficiencia de detección de cada una de estas radiaciones se utilizan muestras de actividad conocida, en matriz terrosa, preparadas con la misma geometría que las muestras a medir. Las muestras de actividad conocida provienen de los sucesivos ejercicios de intercomparación de medidas realizados por el Consejo de Seguridad Nuclear en los que hemos participado conjuntamente con un buen número de laboratorios españoles. Se presta especial atención a la medida de las concentraciones de Cs-137 y Pb-210 en las muestras. Para ello disponemos de varias muestras de sedimentos de actividad conocida medida por el Organismo Internacional de la Energía Atómica y utilizados después en distintos ejercicios de intercomparación.

El cálculo de la concentración de los elementos radiactivos existentes en cada muestra se realiza, como es habitual, a partir del número de cuentas obtenido bajo cada fotopico, teniendo en cuenta background y ruido de fondo, y de su comparación con el proporcionado por las muestras calibradas. En las condiciones utilizadas de masa y geometría de

las muestras, de tiempo de recuento de 24 horas y de ruido de fondo, el límite inferior de detección del método es de 0.5 Bq/Kg para el Cs-137 y de 10 Bq/Kg para el Pb-210. Los errores asociados a las concentraciones obtenidas son debidos principalmente al error estadístico de contaje, menores del 10%.

CALCULO DE TASAS DE SEDIMENTACION

A partir de los resultados obtenidos pueden calcularse las tasas de sedimentación existentes en los puntos muestreados 4 y 9. Este cálculo se basa en las concentraciones encontradas de Pb-210 no soportadas por las correspondientes de Ra-226, Pb-210 en exceso. Para calcular el Pb-210 en exceso basta restar de la concentración de Pb-210 en cada capa la concentración de Ra-226.

Para el cálculo de la tasa de sedimentación en cada punto la primera aproximación consiste en la suposición de que aquella se mantiene constante durante todo el tiempo de formación del sedimento. Esta aproximación es razonable para proporcionar una tasa de sedimentación promedio que, por aplicación del método del Pb-210, lo será durante el período de validez temporal del método.

El valor de la tasa de sedimentación constante se calcula de manera sencilla dentro del modelo C.I.C. Teniendo en cuenta que en este modelo se supone un aporte constante de Pb-210 y una tasa de sedimentación también constante, el Pb-210 en exceso en cada capa del sedimento debe estar relacionado con la profundidad. La relación se expresa en que la concentración en exceso de plomo disminuye exponencialmente con la profundidad, debido a la desintegración radiactiva, al ser cada profundidad una medida del tiempo transcurrido desde la formación de la capa hasta la actualidad o, matemáticamente,

$$C(Pb) = C_0 \exp \{-Iz/a\}$$

donde I es la constante de desintegración del Pb-210, z es la profundidad promedio de cada capa y a es la tasa de sedimentación.

De acuerdo con la expresión anterior para calcular la tasa de sedimentación promedio basta ajustar el conjunto de los valores de Pb-210 en exceso de cada punto muestreado a una función exponencial.

El ajuste de los valores de Pb-210 en exceso obtenido en el punto 4 a una función exponencial da como resultado:

$C(Pb) = 145 \exp \{-0.135 z\}$ $R = 0.9198$
que, por comparación con la ecuación anterior, permite calcular la tasa de sedimentación a:

$$a = \ln 2 / I \cdot 0.135 = 0.23 \text{ cm/año}$$

De la misma manera, el ajuste de los valores de Pb-210 en exceso obtenido en el punto 9 a una función exponencial da como resultado:

$$C(\text{Pb}) = 156 \exp \{-0.104 z\} \quad R = 0.8705$$

que permite calcular una tasa de sedimentación de:

$$a = \ln 2 / 1 \cdot 0.104 = 0.30 \text{ cm/año}$$

Es necesario señalar aquí que estos valores promedio lo son de un intervalo de tiempo correspondiente a las capas de cada muestra utilizadas en el cálculo. Estas han sido de 17, los 17 primeros cm, en el caso del punto 4 y de 24, los 24 primeros cm, en el caso del punto 9. De esta manera los valores de las tasas de sedimentación promedio calculadas serán, según cálculos posteriores, a lo largo de los últimos 74 años en el caso del punto 4 y de los últimos 80 años en el caso del punto 9.

De manera interesante se observa que los coeficientes de ajuste de las funciones exponenciales encontradas son moderadamente bajos. Esto implica que el modelo C.I.C. utilizado, aunque válido para el cálculo de una tasa de sedimentación promedio, no es totalmente adecuado para describir los datos obtenidos, lo que significa que la tasa de sedimentación no se mantiene constante durante el intervalo de tiempo considerado. Una descripción del valor, no constante, de la tasa de sedimentación será obtenido en el cálculo de datación de sedimentos.

APROXIMACION A LA DATACION DE SEDIMENTOS

Teniendo en cuenta los resultados anteriores, que implican una velocidad de sedimentación no constante, el modelo más adecuado es el C.R.S. Este modelo posee una modificación, C.R.S./MV, [12], que proporciona una visión de hasta qué punto la tasa de sedimentación se mantiene constante y, por ello, hemos intentado su aplicación.

Para la aplicación del modelo C.R.S./MV es necesario conocer en primer lugar los valores de la densidad de cada una de las capas del sedimento. A continuación hay que calcular el inventario de Pb-210 en exceso en cada una de las capas multiplicando la concentración por la densidad. Este inventario representa el total de Pb-210 en cada capa. Posteriormente se calcula el inventario acumulado de Pb-210 sumando desde la superficie el valor de cada capa con los anteriores. El inventario acumulado es el conjunto de $A(m_i)$ que se expresan en la exposición hecha sobre el método C.R.S. El último valor del inventario acumulado es el $A(\infty)$ que se usa en la exposición del método.

La suposición del modelo C.R.S./MV es que el conjunto de términos

$$\ln (A(\infty) / (A(\infty) - A(m_i)))$$

es lineal con la profundidad y puede, por tanto, ajustarse a una recta de la forma $a + b z$ que, de acuerdo con el modelo C.R.S., puede ser igualada al término $l t$. De la igualdad de estas dos expresiones puede calcularse la edad de cada capa:

$$t = (a + b z) / l$$

Con respecto al modelo C.R.S., el modelo C.R.S./MV implica de hecho una linealización del inventario acumulado de Pb-210. Se basa en que el conjunto de términos $\ln (A(\infty) / (A(\infty) - A(m_i)))$ se comportará como una recta si a cada $A(m_i)$ se le añade una cantidad constante para dar $A(m_{i+1})$. De esta manera, el conjunto de términos $A(m_i)$ se comportará como una función $A(\infty) \{ 1 - \exp \}$ que, al ser introducida en el término logarítmico, produce que éste sea lineal. Por lo tanto, este modelo es intermedio entre el C.I.C. y el C.R.S. y predecirá tasas de sedimentación constantes.

Para aplicar el modelo C.R.S./MV hemos hecho sucesivos ajustes lineales a los valores de los términos logarítmicos calculados usando números cada vez mayores de puntos a ajustar. En el caso del punto 4 hemos ajustado primeramente 5 términos logarítmicos a una recta con el resultado de que la recta ajustada era:

$$0.0107 + 0.1325 z \quad (R = 0.9988)$$

Esta recta posee un buen coeficiente de correlación y un término independiente próximo a cero por lo que puede considerarse válida. Aplicando el modelo se obtiene la edad de cada una de las primeras 5 capas:

0 - 1 cm	2.6 años
1 - 2 cm	6.6 años
2 - 3 cm	10.6 años
3 - 4 cm	14.6 años
4 - 5 cm	18.6 años

Como puede verse, los valores se corresponden con una tasa de sedimentación de 4 años/cm ó $a = 0.25 \text{ cm/año}$, algo superior al valor promedio obtenido anteriormente.

De la misma manera, hemos ajustado a una recta los valores de los 9 primeros puntos, incluyendo los 5 anteriores, con el resultado de:

$$-0.3122 + 0.2378 z \quad R = 0.9690$$

que no es una ecuación admisible ya que no solamente posee un coeficiente de correlación menor sino que tiene un término independiente elevado, y de valor negativo, que impide calcular la edad para las primeras capas.

En el caso del punto 9 hemos hecho el mismo tipo de análisis, comenzando por ajustar a una recta el conjunto de los primeros 6 datos logarítmicos. La recta ajustada tiene por ecuación:

$$0.0552 + 0.0687 z \quad R = 0.9975$$

que permite calcular la edad de las 6 primeras capas. Estas son:

0 - 1 cm	2.9 años
1 - 2 cm	5.1 años
2 - 3 cm	7.3 años
3 - 4 cm	9.5 años
4 - 5 cm	11.7 años
5 - 6 cm	13.9 años

Este conjunto de valores implican una tasa de sedimentación constante en los primeros 6 cm de 2.2 años/cm ó $a = 0.45$ cm/año, superior a la estimación promedio.

En contraste con el resultado anterior, el ajuste a los primeros 17 puntos ($-0.1768 + 0.1266 z$) o a los primeros 23 puntos ($-0.5785 + 0.1876 z$) no da valores satisfactorios. Posiblemente el método C.R.S./MV utilizado aquí sea válido únicamente para ajustes lineales por tramos en los que deba deducirse la tasa de sedimentación.

CALCULO DE LA EDAD DE LAS CAPAS DE SEDIMENTO

Después de las pruebas anteriores, el cálculo de la edad de cada una de las capas de sedimento de los puntos muestreados ha sido hecho por medio del modelo C.R.S. Igual que anteriormente, para la aplicación de este método es necesario conocer la densidad de cada capa y calcular el inventario de Pb-210 en exceso en cada capa y el inventario acumulado. A partir de estos valores se puede calcular ya la edad de cada capa usando las ecuaciones que describen el modelo y, con las edades de cada capa, las tasas de sedimentación existentes en cada intervalo de tiempo.

En los resultados obtenidos aparece de manera clara la existencia de una modificación de la tasa de sedimentación. A lo largo del tiempo se observa un aumento de la tasa de sedimentación con valores mínimos hace 100 años y valores máximos en la actualidad. Así, en el punto 4 se pasa de un tiempo de unos 13 años para que se deposite un cm ($a =$

0.06 cm/año) a un tiempo de 4.5 años ($a = 0.23$ cm/año). De la misma manera, en el punto 9 se pasa de un tiempo de unos 10 años para que se deposite un cm ($a = 0.10$ cm/año) a un tiempo de 3 años ($a = 0.33$ cm/año).

De manera interesante, puede observarse que los dos puntos muestreados presentan características comunes en cuanto a la modificación de las tasas de sedimentación. En ambos casos se produce un cambio importante en aquellas en torno al año 1950. En el caso del punto 4 se pasa de un valor próximo a 0.06 cm/año a un valor de 0.16 cm/año. En el caso del punto 9 se pasa en las mismas fechas de un valor próximo a 0.10 cm/año a un valor de 0.22 cm/año.

Una modificación de las tasas de sedimentación menos importante, aunque también significativa, se produce en torno al año 1974. En el caso del punto 4, la tasa de sedimentación pasa de ser aproximadamente 0.16 cm/año a ser 0.20 cm/año. En el caso del punto 9, la tasa de sedimentación pasa de ser aproximadamente 0.22 cm/año a ser de 0.33 cm/año.

Teniendo en cuenta los datos anteriores hemos hecho un estudio de las modificaciones que se han realizado en los últimos 100 años en la bahía de Santander relacionadas con la desecación de marismas y rellenos de éstas para construcción. Los resultados obtenidos indican que los períodos de máxima industrialización de la zona sur de la bahía coinciden con los años en los que se han producido variaciones máximas de las tasas de sedimentación. En estos años, las desecaciones y rellenos disminuyeron la superficie de agua de la bahía en una proporción importante. Esta disminución de la superficie de agua debe haber influido en la velocidad de deposición de sedimentos en toda la bahía, coherentemente con los resultados de nuestro estudio, aumentando aquella y tendiendo a convertirla en una marisma.

AGRADECIMIENTOS

Este trabajo ha sido realizado dentro del estudio más amplio "Estudio geoquímico e isotópico de la contaminación por metales pesados y compuestos orgánicos en los sedimentos de la bahía de Santander" dirigido por el Prof. J. Víguri de la Universidad de Cantabria que fue financiado en el año 1998 por la Fundación Marcelino Botín.

REFERENCIAS

- [1] El-Daoushy, F. (1988). A summary on the lead-210 cycle in nature and related applications in Scandinavia. *Environment International*, 14: 305-319.
- [2] Dorr, H. (1995). Application of Pb-210 in soils. *Journal of Paleoclimatology*, 13: 157-168.

- [3] Joshi, S.R. (1989): Common analytical errors in the radiodating of recent sediments. *Environ. Geol. Water Sci.* 14(3): 203-207.
- [4] Appleby, P.G. (1998): Dating recent sediments by Pb-210: problems and solutions. *STUK, Helsinki*, 5-24.
- [5] Faure, G. (1986): *Principles of Isotope Geology*. Ed. Wiley and Sons. New York.
- [6] Shukla, B.S., S.R Joshi, (1989). An evaluation of the CIC model of Pb-210 dating of sediments. *Environ. Geol. Water Sci.* 14(1): 73-76.
- [7] Edgington, D.N., J. Val Klump., J.A, Robbins., Y.S, Kusner., V.D, Pampura., I.V. Sandimirov, (1991): Sedimentation rates, residence times and radionuclide inventories in Lake Baikal from Cs-137 and Pb-210 in sediment cores. *Nature*, 350: 601-604.
- [8] Appleby, P.G., F. Oldfield., (1978): The calculation of lead-210 dates assuming a constant rate of supply of unsupported Pb-210 to the sediment. *Catena*, 5:1-8.
- [9] Martínez, A., L. Romero., J. Palomares., (1990): Datación de sedimentos marinos mediante Pb-210 y Cs-137. XVI Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española. Oviedo, España.
- [10] Appleby, P.G., P.J. Nolan., F. Oldfield., N. Richardson., S.R. Higgitt, (1988): Pb-210 dating of lake sediments and ombrotrophic peats by gamma assay. *Sci. Total Environ.* 69: 157-177.
- [11] Bolívar, J.P., R. García-Tenorio., M. García-León, (1994): A generalized transmission method for gamma efficiency determination in soil samples. *Nucl. Geophys.* 8(5): 485-492.
- [12] Sánchez-Cabeza, J.A., P. Masque, W.R. Schell., A. Palanques., M. Valiente., C.Palet., R. Pérez., J. Pantaleón., (1993): Record of anthropogenic environmental impact in the continental shelf north of Barcelona city. *IAEA-SM-329/18*: 175-183.