

ADVERTIMENT. L'accés als continguts d'aquesta tesi doctoral i la seva utilització ha de respectar els drets de la persona autora. Pot ser utilitzada per a consulta o estudi personal, així com en activitats o materials d'investigació i docència en els termes establerts a l'art. 32 del Text Refós de la Llei de Propietat Intel·lectual (RDL 1/1996). Per altres utilitzacions es requereix l'autorització prèvia i expressa de la persona autora. En qualsevol cas, en la utilització dels seus continguts caldrà indicar de forma clara el nom i cognoms de la persona autora i el títol de la tesi doctoral. No s'autoritza la seva reproducció o altres formes d'explotació efectuades amb finalitats de lucre ni la seva comunicació pública des d'un lloc aliè al servei TDX. Tampoc s'autoritza la presentació del seu contingut en una finestra o marc aliè a TDX (framing). Aquesta reserva de drets afecta tant als continguts de la tesi com als seus resums i índexs.

ADVERTENCIA. El acceso a los contenidos de esta tesis doctoral y su utilización debe respetar los derechos de la persona autora. Puede ser utilizada para consulta o estudio personal, así como en actividades o materiales de investigación y docencia en los términos establecidos en el art. 32 del Texto Refundido de la Ley de Propiedad Intelectual (RDL 1/1996). Para otros usos se requiere la autorización previa y expresa de la persona autora. En cualquier caso, en la utilización de sus contenidos se deberá indicar de forma clara el nombre y apellidos de la persona autora y el título de la tesis doctoral. No se autoriza su reproducción u otras formas de explotación efectuadas con fines lucrativos ni su comunicación pública desde un sitio ajeno al servicio TDR. Tampoco se autoriza la presentación de su contenido en una ventana o marco ajeno a TDR (framing). Esta reserva de derechos afecta tanto al contenido de la tesis como a sus resúmenes e índices.

WARNING. Access to the contents of this doctoral thesis and its use must respect the rights of the author. It can be used for reference or private study, as well as research and learning activities or materials in the terms established by the 32nd article of the Spanish Consolidated Copyright Act (RDL 1/1996). Express and previous authorization of the author is required for any other uses. In any case, when using its content, full name of the author and title of the thesis must be clearly indicated. Reproduction or other forms of for profit use or public communication from outside TDX service is not allowed. Presentation of its content in a window or frame external to TDX (framing) is not authorized either. These rights affect both the content of the thesis and its abstracts and indexes.



Institut de Tècniques Energètiques

inte

UNIVERSITAT POLITÈCNICA DE CATALUNYA

Institut de Tècniques Energètiques (INTE)
Universitat Politècnica de Catalunya (UPC)

Tesis doctoral

Caracterización de Aerosoles Radiactivos en la Ciudad de Barcelona

Programa de doctorado en Ingeniería Nuclear
y de las Radiaciones Ionizantes

Autor:

Miguel Ángel González de Perosanz

Director de tesis:

Dr. Arturo Vargas Drechsler

Febrero de 2012

ACTA DE CALIFICACIÓN DE LA TESIS DOCTORAL

Reunido el tribunal integrado por los abajo firmantes para calificar la tesis doctoral:

Título de la tesis: Caracterización de aerosoles radiactivos en la ciudad de Barcelona

Autor de la tesis: Miguel Angel González de Perosanz

Acuerda otorgar la calificación de:

- No apto
- Aprobado
- Notable
- Excelente
- Excelente Cum Laude

Barcelona, ... de de

El Presidente

El secretario

.....

.....

El vocal

El vocal

.....

.....

*A mis padres
y hermana*

Este trabajo ha sido financiado parcialmente a través de la cátedra ARGOS del Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) y del proyecto CGL2005-04182 "Evolución de los inventarios de aerosoles radiactivos de origen natural y artificial en áreas urbanas" del Ministerio de Educación y Ciencia (MEC).

El Institut de Tècniques Energètiques (INTE) de la Universitat Politècnica de Catalunya (UPC), especialmente a través de mi director de tesis Arturo Vargas y del equipo profesional del Laboratorio de Análisis de Radiactividad (LARA), me ha ofrecido la posibilidad de desarrollar este trabajo, ofreciéndome apoyo logístico y el acceso a su instrumentación, datos, experiencia y conocimiento.

La Universitat de Barcelona (UB), el Instituto de Ciencias de la Tierra Jaume Almera del Centro Superior de Investigaciones Científicas (CSIC), el Air Resources Laboratory (ARL) y el National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) también han contribuido al desarrollo de la tesis facilitándome datos fundamentales para la realización de diversos estudios descritos en este trabajo.

Agradecimientos

El aprendizaje que he recibido durante el desarrollo de esta tesis no se limita a los aspectos meramente científicos. En todo este tiempo ha habido personas que de una u otra manera me han ayudado a seguir adelante y con ello llegar a este punto en el cual concluye una etapa de mi vida que estoy seguro siempre recordaré con cariño. Así, deseo expresar mi agradecimiento a las siguientes personas:

A mi director de tesis, Arturo Vargas, por brindarme la oportunidad de iniciarme en el mundo de la investigación y tener la paciencia de guiarme durante todos estos años de trabajo en equipo. Por todo lo aprendido y por enseñarme a trabajar con el grado de rigurosidad necesario en un trabajo de estas características.

A todo el equipo técnico del LARA. A Isabel Vallés y Antonia Camacho por permitirme acceder sin miramientos a todo su conocimiento y logística de la manera más humana posible. A Isabel Serrano y Silvia Pérez por escucharme y ayudarme en todas las labores técnicas, siempre con una sonrisa.

A todo el personal del INTE especialmente a Vicente Blasco, Roger Caballero, Juan Antonio Romero y Mari Carmen Riverola por su calidad profesional y humana. A María Belén Gómez por todos los buenos momentos vividos tanto dentro como fuera de la universidad.

A todos mis compañeros de doctorado. Especialmente a Claudia Grossi, por las alegrías y tristezas compartidas y por hacer que el día a día haya sido más llevadero ofreciéndome su amistad.

A Jordi Freixa y Marina Pérez por mostrarme el camino durante mi primera etapa en Barcelona y ayudarme en mi adaptación a una ciudad totalmente nueva para mí.

A todos mis amigos tanto de Madrid como de Barcelona: David Gallardo, Antonio Gras, Juan Luis Molina, Belén Baltanás, Pablo Nieto, Vicente Caballero, María García, Paloma Rodríguez, Raquel Rodríguez, Ana de Dios, Ricardo Romero, Alejandra Pineda, Oriol Nieto y más. Por todos los buenos momentos vividos con cada uno de ellos. Sin vosotros no hubiera sido posible.

A todos mis compañeros de cuerda por los inolvidables momentos de fanatismo especialmente Rubén Soto, Diego Izquierdo, Cristian Jaraba, Martin Wolf y Pau Freixes.

A Elena de la Concha por ser alguien especial para mí. Por darme fuerza sin saberlo para seguir adelante incluso en los momentos más difíciles. Por lo vivido y por nuestro futuro.

A mi hermana y a Laurent, siempre dispuestos a ayudarme. A Sophie, por darme fuerzas a su manera para finalizar esta etapa. Bienvenida.

Especialmente a Mis Padres, por ser el motor de todo. Por su apoyo y comprensión incondicional durante todo el doctorado. No puedo encontrar palabras suficientes que muestren mi agradecimiento por haberme educado en unos valores que ahora sé apreciar más que nunca. Simplemente gracias.

Índice general

I	Introducción	1
1	Introducción	1
1.1	Finalidad y objetivos	1
1.2	Antecedentes	2
1.3	Resumen	6
2	Aerosoles radiactivos	8
2.1	Introducción	8
2.2	Aerosoles radiactivos naturales	11
2.2.1	Aerosoles radiactivos cosmogénicos	11
2.2.2	Aerosoles radiactivos procedentes de elementos con cadena de desintegración	15
2.2.3	Aerosoles radiactivos de elementos estables	26
2.3	Aerosoles radiactivos artificiales	26
2.4	Aerosoles TENORM	29
2.5	Estudios previos de los aerosoles radiactivos en la ciudad de Barcelona	30
2.5.1	Introducción	30
2.5.2	Características de la topografía y geografía de la ciudad de Barcelona	30
2.5.3	Características climatológicas de la ciudad de Barcelona	31
2.5.4	Aerosoles radiactivos de vida larga	33
2.5.5	Aerosoles radiactivos de vida corta. Descendientes de radón	34
II	Instrumentación y metodología	38
3	Instalaciones, equipos y metodología	38
3.1	Introducción	38
3.2	Instalaciones	38
3.2.1	La estación radio-meteorológica automática del Campus Nord	39

3.2.2	La estación de muestreo radiológico del Campus Sud	41
3.2.3	El Laboratorio de Análisis de Radiactividad (LARA)	42
3.3	Equipos para la medida de aerosoles radiactivos	44
3.3.1	Equipos de la estación radio-meteorológica del Campus Nord	44
3.3.1.1	Monitor de aerosoles radiactivos en continuo	44
3.3.1.2	Monitor de tasa de dosis	46
3.3.1.3	Equipo de medida en continuo de la actividad del agua de lluvia . .	47
3.3.2	Equipos de la estación de muestreo radiológico del Campus Sud	48
3.3.2.1	Equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volúmen	48
3.3.2.2	Equipo para la medida del espectro dimensional de aerosoles radiactivos	49
3.3.2.3	Medidor de deposición seca y húmeda de aerosoles radiactivos . . .	52
3.3.3	Equipos del Laboratorio de Análisis de Radiactividad	54
3.3.3.1	Detectores de espectrometría gamma de alta resolución	54
3.3.3.2	Contadores proporcionales alfa y beta de bajo fondo a flujo de gas .	55
3.4	Estimación de correlaciones entre variables radiológicas y meteorológicas	55
3.4.1	Introducción	55
3.4.2	El coeficiente de correlación de Pearson	56
3.5	Estimación del tiempo de residencia	57
3.5.1	Introducción	57
3.5.2	El método del cociente de actividades	57
3.5.2.1	El método del cociente de actividades $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$	58
3.5.2.2	El método del cociente de actividades $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$	59
3.5.2.3	El método del cociente de actividades $^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$	59
3.5.3	El método AMAD	59
3.5.3.1	El método AMAD de crecimiento del ^7Be	61
3.5.3.2	El método AMAD de crecimiento del ^{210}Pb	61
3.6	Estimación de parámetros de deposición seca y húmeda	62
3.6.1	Deposición seca	62
3.6.2	Deposición húmeda	62

III Resultados	64
4 Análisis estadístico de los aerosoles radiactivos en Barcelona	64
4.1 Introducción	64
4.2 Descendientes de vida corta del ^{222}Rn	64
4.2.1 Evolución diaria	66
4.2.2 Evolución estacional	68
4.2.3 Evolución mensual	70
4.2.4 Correlación de los descendientes de ^{222}Rn con variables meteorológicas . . .	70
4.2.4.1 Introducción	70
4.2.4.2 Correlación de los descendientes de ^{222}Rn con temperatura, humedad relativa, radiación solar, presión atmosférica y viento	71
4.2.4.3 Correlación de los descendientes de ^{222}Rn con la lluvia	75
4.2.4.4 Correlación con la estabilidad atmosférica	76
4.3 ^7Be	78
4.4 ^{40}K	81
4.5 ^{210}Pb	84
4.6 Estimación del origen del ^{137}Cs	86
4.7 Correlación entre los radionucleidos de vida larga y cantidad de polvo recogida . . .	97
5 Tiempo de residencia de aerosoles	100
5.1 Introducción	100
5.2 Resultados	100
5.2.1 Estimación del AMAD del ^{214}Pb	100
5.2.2 Estimación del tiempo de residencia	102
5.3 Análisis estacional	102
6 Determinación de los parámetros de velocidad de deposición seca y húmeda	107
6.1 Introducción	107
6.2 Velocidad de deposición seca	107
6.3 Coeficiente de lavado por deposición húmeda	108

6.3.1	Análisis estacional	110
IV	Conclusiones	111
7	Conclusiones	111
7.1	Conclusiones generales	111
7.2	Instrumentación y metodología	111
7.3	Análisis estadístico	112
7.4	Tiempos de residencia	113
7.5	Deposición seca y húmeda	114
7.6	Estudios futuros y mejoras	114
V	Referencias	115
8	Referencias	115
VI	Apéndices	124
A	Resolución de las ecuaciones de los radionucleidos medidos en el INTE	124
A.1	Introducción	124
A.2	Ecuaciones relativas al monitor de aerosoles radiactivos de medida en continuo . . .	124
A.3	Ecuaciones relativas al equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volumen . .	128
A.4	Ecuaciones relativas al equipo medidor de deposición seca y húmeda de aerosoles radiactivos	131
A.5	Ecuaciones relativas a la actividad en el agua de lluvia	132
A.6	Ecuaciones relativas al equipo para la medida del espectro dimensional de aerosoles radiactivos	134
A.7	Consideraciones relativas al uso del ^{210}Po y ^{210}Pb en el cálculo del tiempo de residencia mediante el método del cociente de actividades	137
B	Criterios de elección del par de radioisótopos para el cálculo del tiempo de residencia según el método del cociente de actividades	139

B.1	Introducción	139
B.2	Criterios relativos a la evolución de la actividad de los radioisótopos en el aire	139

Índice de figuras

1	Instalaciones nucleares y radiactivas del ciclo del combustible nuclear en España . . .	4
2	Localización de la Red de estaciones automáticas (REA) de la red de vigilancia radiológica ambiental y tasa de dosis media diaria y mensual	5
3	Fuentes de exposición de origen natural y artificial	8
4	Rangos de tamaños de partículas para aerosoles	9
5	Velocidad de deposición frente a tamaño de partícula	11
6	Concentraciones de actividad medias mensuales de ^7Be en hemisferio norte y hemisferio sur	12
7	Concentración de ^7Be frente al número de manchas solares entre 1987 y 2003	13
8	Evolución temporal del número de manchas solares desde 1980	14
9	Predicción del número de manchas solares realizada por la NASA durante marzo de 2011	14
10	Concentración de actividad media semanal de ^7Be , ^{210}Pb y ratio de $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ en Braunschweig (Alemania)	15
11	Proceso seguido por el radón y sus descendientes	16
12	Promedio mensual de actividad de los descendientes de vida corta del ^{222}Rn en Bucarest (Rumanía)	17
13	Promedio mensual de concentración de ^{210}Pb en Jungfrauoch (Suiza)	17
14	Distribución vertical atmosférica del promedio de concentraciones de ^7Be y ^{210}Pb entre 1987 y 1998 en Polonia	18
15	Representación esquemática de la desintegración del radón y posterior formación de partículas de aerosoles	19
16	Cadena de desintegración del ^{238}U	20
17	Cadena de desintegración del ^{235}U	21
18	Cadena de desintegración del ^{232}Th	22
19	Concentración media mensual de ^{40}K y ^{137}Cs en Braunschweig (Alemania) y ratio de actividades $A(^{40}\text{K})/A(^{137}\text{Cs})$	26
20	Concentración de actividad mensual promedio de ^{137}Cs y ^7Be medido en Braunschweig (Alemania) entre 1963 y 2003	28
21	Mapa de deposición de ^{137}Cs en suelo europeo como consecuencia del accidente de Chernobyl	28

22	Vista aérea de la ciudad de Barcelona	30
23	Procedencia de vientos en Barcelona durante el período comprendido entre 2005 y 2009	32
24	Concentración de actividad promediada anualmente para diferentes radioisotopos entre 2001 y 2005	33
25	Concentraciones de actividad de ^7Be , ^{210}Pb , ^{40}K y ^{137}Cs promediadas mensualmente entre 2001 y 2005	34
26	Evolución horaria de la concentración de radón para las cuatro estaciones en la estación del Campus Nord, entre los años 1995 y 1999	35
27	Concentración de radón en función de la velocidad y dirección del viento en la estación del Campus Nord durante las cuatro estaciones entre los años 1995 y 1999	36
28	Tasa de dosis debida a los descendientes del radón durante un episodio de lluvia observado en la estación radiometeorológica del Campus Nord de Barcelona	37
29	Actividad específica de ^{214}Pb y ^{214}Bi en el agua de lluvia registrada durante el día 1 de enero del año 1999 en la estación radiometeorológica del Campus Nord	37
30	Situación de la estación de muestreo radiológico del Campus Sud y de la estación radiometeorológica del Campus Nord	39
31	Situación de la estación radiometeorológica del Campus Nord	40
32	Planta de distribución interior de la caseta de la estación radiometeorológica del Campus Nord	40
33	Fachada principal de la caseta de la estación radiometeorológica del Campus Nord	41
34	Vista general de la estación de muestreo radiológico del Campus Sud	42
35	Laboratorio radioquímico del INTE	43
36	Laboratorio de bajo fondo del INTE	44
37	Fotografía del monitor Berthold	45
38	Vista del desplazamiento del filtro del equipo Berthold	45
39	Comparativa entre las concentraciones de descendientes de ^{222}Rn obtenidas por el equipo Berthold y el sistema desarrollado por el INTE	46
40	Comparación entre las concentraciones de descendientes obtenidas por el equipo Berthold corregido por un desfase temporal de 1 hora y el sistema desarrollado por el INTE	46
41	Monitor de tasa de dosis de la estación radio-meteorológica del Campus Nord	47
42	Esquema general del equipo SARAC	48

43	Vista general del equipo de alto caudal	49
44	Vista general del impactor y bomba de aspiración de aire	49
45	Equipo impactor. Esquema general de una etapa	50
46	Representación esquemática de la dinámica de funcionamiento del impactor en una de las etapas	51
47	Curvas de eficiencia de las diferentes etapas del equipo medidor del espectro dimensional de aerosoles	52
48	Equipo de deposición seca y húmeda	53
49	Detector de Germanio existente en el LARA	55
50	Contador proporcional alfa beta existente en el LARA	56
51	Distribución lognormal típica de tamaño de partícula para ^{210}Pb	60
52	Ajuste logarítmico normal por frecuencias de la concentración de descendientes de ^{222}Rn	65
53	Concentración descendientes ^{222}Rn promediado con la hora del día en el período comprendido entre los años 2005 y 2009. Monitor de aerosoles radiactivos en continuo	66
54	Concentración de los descendientes de ^{222}Rn frente a la altura de la capa de mezcla promediados con la hora del día en el período comprendido entre los años 2005 y 2009	67
55	Periodogramas de los descendientes de vida corta de ^{222}Rn por hora y meses durante el período comprendido entre 2005 y 2009	68
56	Concentración de descendientes de vida corta del ^{222}Rn promediado con la hora del día en el período comprendido entre los años 2005 y 2009, para las diferentes estaciones del año	69
57	Altura de la capa de mezcla promediada con la hora del día en el período comprendido entre los años 2005 y 2009	69
58	Promedio mensual de concentración de descendientes de ^{222}Rn frente a temperatura en el período comprendido entre los años 2005 y 2009. Monitor de aerosoles radiactivos en continuo	70
59	Concentración descendientes ^{222}Rn frente a la temperatura y velocidad de viento, promediado por horas durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009 .	71
60	Ajuste lineal nocturno y diurno de la concentración descendientes de vida corta del ^{222}Rn con la temperatura	72
61	Ajuste lineal nocturno y diurno de la concentración descendientes de vida corta del ^{222}Rn con la velocidad del viento	72

62	Concentración descendientes ^{222}Rn frente a la radiación solar y humedad relativa, promediado por horas durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009	73
63	Concentración de descendientes de ^{222}Rn (Bq/m^3), para distintos rangos de velocidad y dirección de viento. Promedio del período comprendido entre 2005 y 2009	74
64	Datos obtenidos mediante el monitor de tasa de dosis y su comparativa con los datos de lluvia caída durante los años 2006 y 2007	75
65	Número de casos para cada una de las situaciones de estabilidad durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009	77
66	Altura de la capa de mezcla y concentración de descendientes de ^{222}Rn para cada una de las situaciones de estabilidad durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009	78
67	Concentración ^7Be y radiación solar mensual durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009	79
68	Concentración de ^7Be en Barcelona durante los años 2001-2009 (equipo alto volumen) y número de manchas solares	79
69	Periodograma del ^7Be por semana durante el período comprendido entre 2001 y 2009	80
70	Ajuste logarítmico normal por frecuencias de la concentración de ^7Be	80
71	Evolución temporal de la concentración de actividad de ^{40}K durante el período comprendido entre los años 2001 y 2009	81
72	Evolución temporal de la concentración de actividad de ^{40}K por unidad de masa durante el período comprendido entre los años 2001 y 2009	82
73	Evolución temporal del ^{40}K promediado mensualmente durante el período de tiempo comprendido entre los años 2001 y 2009. Comparativa con la semana de San Juan	83
74	Periodograma del ^{40}K por semana durante el período comprendido entre 2001 y 2009	83
75	Ajuste logarítmico normal por frecuencias de la concentración de ^{40}K	84
76	Evolución temporal de la concentración de actividad de ^{210}Pb entre 2001 y 2009 en Barcelona	85
77	Concentración de ^{210}Pb y cantidad de polvo recogido en el filtro promediado por meses entre 2001 y 2009 en Barcelona	85
78	Evolución temporal de la concentración de ^{210}Pb promediado por meses entre 2001 y 2009 en Barcelona	86
79	Periodograma del ^{210}Pb por semana durante el período comprendido entre 2001 y 2009	87
80	Ajuste logarítmico normal por frecuencias de la concentración de ^{210}Pb	87

81	Evolución temporal de la concentración de actividad de ^{40}K y ^{137}Cs durante el año 2004	88
82	Actividad de ^{40}K por gramo frente a la actividad de ^{137}Cs por kilogramo durante los 54 episodios de detección de ^{137}Cs	89
83	Probabilidad de detección de ^{137}Cs según el número de días con masas de aire procedentes de África por muestra	91
84	Probabilidad de detección de ^{137}Cs y peso en polvo recogido	91
85	Probabilidad de detección de ^{137}Cs según el número de días con masas de aire regionales por muestra	92
86	Probabilidad de detección de ^{137}Cs según el número de días con masas de aire procedentes de Centroeuropa por muestra	93
87	Probabilidad de detección de ^{137}Cs según el número de días con masas de aire procedentes del Mediterráneo por muestra	94
88	Probabilidad de detección de ^{137}Cs según el número de días con masas de aire procedentes del Atlántico por muestra	95
89	Ajuste logarítmico normal por frecuencias de la concentración de ^{137}Cs	97
90	Concentraciones de ^{210}Pb frente a ^7Be , ^{137}Cs frente a ^{40}K y ^{40}K frente a la cantidad de polvo recogido en el filtro	98
91	Ejemplo de AMAD del ^{214}Pb en Barcelona	101
92	AMAD correspondiente al ^{214}Pb en Sao José dos Campos (Brasil)	101
93	Tiempos de residencia obtenidos mediante el método del crecimiento del ^{210}Pb	102
94	Promedio estacional del tiempo de residencia obtenido mediante el método del crecimiento del ^{214}Pb	103
95	Evolución mensual del AMAD del ^{210}Pb en Neuherberg (Alemania)	104
96	Evolución mensual del tiempo de residencia de los aerosoles atmosféricos entre octubre de 1984 y marzo de 1986 en el Oak Ridge National Laboratory (Tennessee, U.S.A.)	104
97	Resumen de precipitación mensual normal en Tennessee	105
98	Evolución temporal del tiempo de residencia y lluvia	106
99	Evolución temporal del valor de la velocidad de deposición seca de ^7Be entre 2008 y 2010	107
100	Evolución del valor del coeficiente de lavado por deposición húmeda de ^7Be entre 2008 y 2010	109
101	Promedio estacional del coeficiente de lavado por deposición húmeda de ^7Be	110

102	Esquema de la evolución de la actividad de ^7Be en el filtro del equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volumen	129
103	Esquema de la evolución de la actividad de ^{210}Pb en el filtro del equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volumen	130
104	Esquema de la evolución de la actividad del agua de lluvia en la cubeta del equipo de deposición húmeda	132
105	Evolución de la concentración de descendientes de ^{222}Rn y cociente de actividades $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ para una concentración inicial de 1 Bq/L para cada uno de los radionucleidos	133
106	Esquema de la evolución de la actividad de los descendientes de vida larga del ^{222}Rn en filtros del equipo para la medida del espectro dimensional de aerosoles radiactivos	137
107	Tiempo de residencia en función de la actividad del radionucleido hijo según el método del cociente de actividades para diferentes valores de λ_d	140

Índice de tablas

1	Modos de desintegración de los radionucleidos de la cadena de desintegración del ^{238}U y energía de la radiación generada en keV. Entre paréntesis, la fracción de ramificación, en %. En el caso de partículas β , se indica la energía máxima	23
2	Modos de desintegración de los radionucleidos de la cadena de desintegración del ^{235}U y energía de la radiación generada en keV. Entre paréntesis, la fracción de ramificación, en %. En el caso de partículas β , se indica la energía máxima	24
3	Modos de desintegración de los radionucleidos de la cadena de desintegración del ^{232}Th y energía de la radiación generada en keV. Entre paréntesis, la fracción de ramificación, en %. En el caso de partículas β , se indica la energía máxima	25
4	Actividades vertidas por isótopo en efluentes gaseosos (Bq/año) en la central nuclear de Vandellós II (Tarragona) (CSN, 2010)	29
5	Diámetro de corte aerodinámico y rango de medida del equipo impactor	51
6	Porcentaje de datos disponibles	65
7	Ecuaciones resultantes del ajuste lineal entre la concentración de descendientes de vida corta del ^{222}Rn y la temperatura y velocidad del viento	73
8	Concentración de ^{214}Pb y ^{214}Bi en el agua de lluvia, ratio y tiempo asociado en horas	76
9	Clases de estabilidad según Pasquill	76
10	Condiciones meteorológicas que definen las clases de estabilidad	77
11	Ratio para cálculo de la incidencia de las masas de aire según su procedencia en la detección de ^{137}Cs	90
12	Clasificación según el número de días por muestra con masas de aire procedentes del norte de África	90
13	Clasificación según el número de días por muestra con masas de aire de origen regional	92
14	Clasificación según el número de días por muestra con masas de aire procedentes de Centroeuropa.	93
15	Clasificación según el número de días por muestra con masas de aire procedentes del Mediterráneo.	94
16	Clasificación según el número de días por muestra con masas de aire procedentes del océano Atlántico.	95
17	Actividad de ^{137}Cs por gramo según el origen de las masas de aire	96
18	Coefficientes de Pearson entre las concentraciones de los radionucleidos de vida larga y cantidad de polvo recogido en el filtro. Entre paréntesis el nivel de significación .	98

19	Coeficientes de Pearson entre las concentraciones de los radionucleidos de vida larga y cantidad de polvo recogido en el filtro (Vallés et al., 2009). Entre paréntesis el nivel de significación	99
20	AMAD del ^{214}Pb	100
21	AMAD del ^{210}Pb y tiempo de residencia asociado para cada estación del año	103
22	Tiempo de residencia estacional calculado mediante el cociente de $^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Pb}$ (Ahmed et al., 2004)	105
23	Velocidades deposición seca del ^{210}Pb y ^{40}K	108
24	Valores promediados de velocidad de deposición seca	108
25	Valores promedio del coeficiente de lavado por deposición húmeda	109
26	Resultados de distribución logarítmico-normal por frecuencias para los diferentes radionucleidos estudiados en este trabajo	112
27	Estimación de la evolución de las actividades de ^{210}Po para una muestra tomada en presencia o ausencia del mismo en el aire	138

Parte I

Introducción

1 Introducción

1.1 Finalidad y objetivos

La finalidad de la tesis es la de contribuir al conocimiento de las características y comportamiento de los aerosoles radiactivos en áreas urbanas. El estudio de los aerosoles radiactivos se llevará a cabo en la ciudad de Barcelona, donde el Instituto de Técnicas Energéticas (INTE) de la Universidad Politécnica de Cataluña (UPC) dispone de una gran variedad de equipos para su medida. De esta manera, existe un elevado volumen de información que ha permitido el desarrollo de la tesis.

La radiación de origen natural debida a los elementos radiactivos existentes en la corteza terrestre y las radiaciones procedentes del espacio exterior constituyen la principal fuente de exposición de la población a las radiaciones ionizantes. Por otro lado, las explosiones de armas atómicas en la atmósfera y algunos accidentes en instalaciones que trabajan con materiales radiactivos han introducido en el medio ambiente isótopos radiactivos que no existen de forma natural. Las primeras, de un modo global por toda la biosfera, los segundos más localizados de modo regional. Al conjunto de dichas radiaciones se le conoce como fondo radiactivo. Otras actividades humanas, tales como la producción de energía eléctrica de origen nuclear, las aplicaciones de isótopos radiactivos en medicina, agricultura, industria e investigación, los residuos que se originan en los grandes movimientos de tierras para la explotación de yacimientos de minerales de uranio y torio, las emisiones rutinarias vertidas por las centrales nucleares, o el material radioactivo natural cuya actividad ha sido intensificada tecnológicamente (TENORM), contribuyen también a incrementar la presencia de elementos radiactivos en el medio ambiente.

De esta situación surge la necesidad de disponer de un elevado conocimiento del fondo radiológico que permita ser utilizado en los análisis de los datos obtenidos por las redes de vigilancia radiológica. Dichas redes están incorporadas en los planes de vigilancia radiológico, cuyos objetivos, de acuerdo con lo establecido por el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), son:

- Detectar la presencia y vigilar la evolución de elementos radiactivos y de los niveles de radiación en el medio ambiente, determinando las causas de los posibles incrementos.
- Estimar el riesgo radiológico potencial para la población.
- Determinar, en su caso, la necesidad de tomar precauciones o establecer alguna medida correctora.

En la tesis se han utilizado datos de equipos de medida que se encuentran en funcionamiento desde hace ya más de una década, permitiendo la posibilidad de disponer de un elevado grado de fiabilidad en los análisis estadísticos. Asimismo, en el desarrollo del trabajo se han puesto en marcha equipos de reciente adquisición necesarios para ampliar el conocimiento de las características y comportamiento de los isótopos radiactivos en el medio ambiente. Desde el comienzo de esta tesis, se ha tenido presente que Barcelona posee unas características topográficas y geográficas peculiares

ya que Barcelona es una ciudad costera, pudiendo ser por tanto interesante la comparación con los comportamientos de los mismos aerosoles en otros lugares.

Así, en el desarrollo del presente trabajo, se han planteado los siguientes objetivos:

- Estudio bibliográfico del inventario de aerosoles. Para llevar a cabo dicha tarea, se han estudiado los diferentes aerosoles naturales y artificiales que se pueden encontrar en la naturaleza, así como su evolución temporal y su correlación con los parámetros meteorológicos. Para ello se ha realizado un trabajo previo de búsqueda de literatura relacionada con el tema, tanto externa como del propio grupo de estudios de radiactividad ambiental del INTE en la ciudad de Barcelona.
- Puesta en marcha de equipos. Los equipos existentes en las estaciones radiometeorológicas del INTE llevan años midiendo en continuo, lo que nos permite tener datos en un abanico temporal amplio. En el caso de los equipos de más reciente adquisición, para contribuir a la caracterización de los aerosoles llevada a cabo en esta tesis, ha sido necesario realizar un trabajo de puesta en marcha.
- Análisis de datos. El volumen total de información con actividad de los radionucleidos que se han obtenido con los equipos ha sido recopilado y analizado. Se ha realizado un análisis estadístico que comprende promedios, desviaciones, series y comparaciones. Estos valores pueden ser utilizados como base para establecer un plan de vigilancia radiológica. Asimismo, las correlaciones con los parámetros meteorológicos como por ejemplo los referentes a la radiactividad existente en el agua de lluvia, se han utilizado también para obtener conclusiones acerca del comportamiento de los aerosoles radiactivos en la ciudad de Barcelona.
- Estimación del tiempo de residencia de los aerosoles. El tiempo de residencia de los aerosoles en la atmósfera puede verse afectado por diferentes procesos naturales, tales como la deposición seca o húmeda. Las estimaciones acerca de su valor pueden ser realizadas mediante diferentes métodos, que han sido analizados y aplicados a la ciudad de Barcelona en base a los métodos más acordes a la instrumentación y medios existentes en el INTE.
- Estimación de velocidad de deposición de los aerosoles urbanos. Este estudio, realizado por primera vez en la ciudad de Barcelona, ha necesitado de la puesta en marcha de nuevos equipos que han permitido llevar a cabo las medidas tanto en el caso de la deposición seca como húmeda. Así, fue adquirido un equipo de muestreo de deposición seca y húmeda para tal fin, ubicado actualmente en el terrado del INTE. Los datos obtenidos se han relacionado con los parámetros meteorológicos y con otras características de los aerosoles como por ejemplo el tamaño de partícula.
- Identificación de escenarios para determinar el origen de los aerosoles. Se ha realizado una clasificación de episodios sinópticos en función del origen del viento para estimar el posible origen de los aerosoles que transportaban ^{137}Cs . Una vez concluida esta clasificación según los episodios sinópticos, se ha realizado un análisis estadístico relacionando el número de detecciones de ^{137}Cs con el lugar de procedencia de la masa de aire.

1.2 Antecedentes

Inicialmente, la vigilancia radiológico-ambiental estaba muy localizada en las áreas de influencia de las potenciales fuentes radiactivas. Las escasas estaciones existentes se dedicaban principalmente

al análisis local de los fenómenos relacionados con los campos de radiación ionizante ambiental.

En Europa, el interés por la vigilancia radiológica ambiental se materializó con la firma, el día 25 de marzo del año 1957, del Tratado constitutivo de la Comunidad Europea de la Energía Atómica (EURATOM), cuya finalidad es establecer un mercado común de productos nucleares, y fomentar el desarrollo pacífico de la energía nuclear entre sus países miembros. En este tratado se establece que los diversos países miembros deben desarrollar sistemas de vigilancia ambiental para garantizar la seguridad y protección radiológica de la población. Para hacer frente a estos requisitos diversos países crearon redes de vigilancia radiológica de ámbito nacional compuestas por estaciones de medida de variables radiológicas y meteorológicas, encargadas de realizar el seguimiento de los niveles de radiación ambiental del aire, agua y suelo, con el fin de detectar incrementos del fondo debido a causas no naturales. Además, a raíz del accidente de la central nuclear de Chernobyl en el año 1986, se comprobó que el área de influencia de una emisión radiactiva accidental puntual podría abarcar una zona muy extensa con independencia de los límites fronterizos nacionales. Este hecho obligó a revisar los planes de vigilancia de la mayoría de países que disponían de instalaciones nucleares o también de aquellos países que se encontraban dentro del área de influencia radiológica aún sin disponer de dichas instalaciones. Esta revisión hizo salir a la luz la necesidad de disponer de redes de vigilancia radiológica capaces de cubrir grandes regiones.

A lo largo de la vida de EURATOM se han producido diversas modificaciones en la normativa referente a los programas de vigilancia ambiental de acuerdo con la experiencia adquirida por los diversos estados miembros. Una iniciativa importante de EURATOM ha sido la creación de dos tipos de redes de vigilancia radiológica de ámbito europeo denominadas red de vigilancia densa y red de vigilancia espaciada. La red de vigilancia densa consiste en un conjunto de puntos de muestreo distribuidos por todo el territorio de los Estados miembros de EURATOM que permiten calcular el valor medio regional de radiactividad. Por lo que respecta a la red de vigilancia espaciada está formada habitualmente por algunas de las estaciones pertenecientes a la red densa, en las que se obtienen medidas con una gran sensibilidad para permitir realizar un seguimiento de los niveles de radiactividad y sus tendencias.

Por lo que respecta a España, antes de la entrada en la Unión Europea (enero de 1986), la vigilancia radiológica ambiental en España estaba esencialmente centrada en los emplazamientos de las instalaciones nucleares y su entorno, a ciertas instalaciones del Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT) y a otros pocos emplazamientos surgidos como fruto de iniciativas puntuales. Con la incorporación de España en la Unión Europea y por ende a EURATOM y además a raíz del accidente en la central nuclear de Chernobyl ocurrido el 26 de abril del año 1986, se hizo patente las insuficiencias de los sistemas de vigilancia que garantizaran la seguridad y protección radiológica de la población frente a incrementos de los campos de radiación ionizante ambiental.

Surgió así la necesidad de crear una red de vigilancia radiológica a nivel estatal para cumplir con los requisitos del tratado de EURATOM y de esta forma monitorizar la dispersión de contaminantes radiactivos en la atmósfera y su influencia en la tasa de dosis ambiental. El sistema de vigilancia radiológica ambiental está constituido por:

- La red de la zona de influencia de las centrales nucleares y otras instalaciones nucleares y radiactivas del ciclo del combustible, donde la vigilancia se realiza mediante los Programas de Vigilancia Radiológica Ambiental (PVRA). Existen actualmente catorce PVRA (tal y como se observa en la

figura 1).

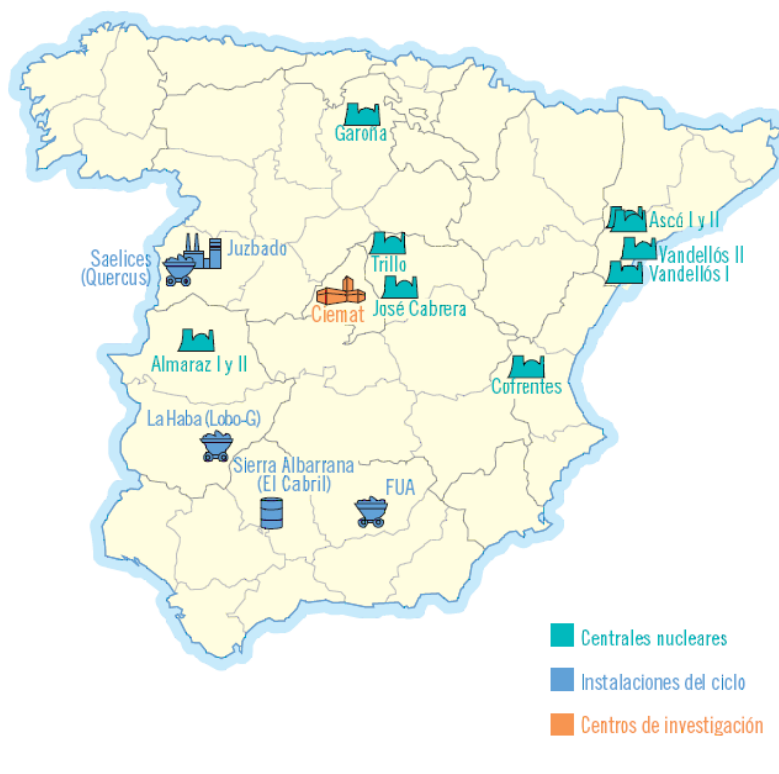


Figura 1: Instalaciones nucleares y radiactivas del ciclo del combustible nuclear en España

- La Red de Vigilancia Radiológica Ambiental nacional (REVIRA), no asociada a instalaciones nucleares, para cubrir la vigilancia de la totalidad del territorio del estado impulsada por el CSN en áreas geográficamente lejanas de las instalaciones nucleares. Esta red está constituida por la Red de Estaciones de Muestreo (REM), donde la vigilancia se realiza mediante programas de muestreo y análisis llevados a cabo por diferentes laboratorios y la Red de Estaciones Automáticas (REA) que tiene como principal objetivo la vigilancia en tiempo real de la radiactividad en la atmósfera y obtener información adecuada para ayudar a la toma de decisiones en los momentos iniciales de un posible accidente nuclear. Por lo que se refiere a Cataluña, la red creada por el Servei de Coordinació d'Activitats Radiològiques (SCAR) se encarga de la vigilancia de los campos de radiación ionizante ambiental. La figura 2 muestra la localización de las estaciones REA en el estado español así como la tasa de dosis media diaria y la tasa de dosis media mensual mostrados el día 1 de abril de 2011.

El INTE dispone de dos emplazamientos para la vigilancia y medida de la radiación atmosférica en la ciudad de Barcelona: la estación radiológica y meteorológica automática situada en el Campus Nord de la UPC, y la estación de muestreo radiológico situada en el Campus Sud de la UPC. Estas instalaciones permiten tener un volumen de datos radiológicos y meteorológicos suficientes para la realización de estudios tales como los desarrollados en este trabajo. Estas estaciones se describen en detalle posteriormente.

Diversos trabajos de investigación han sido desarrollados en el INTE, aportando resultados útiles

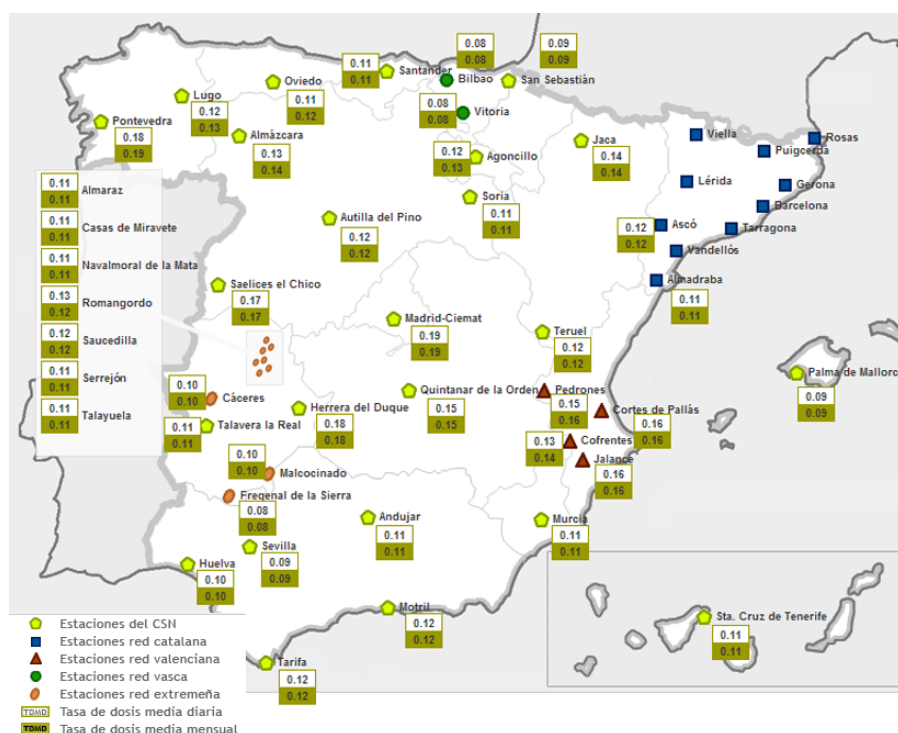


Figura 2: Localización de la Red de estaciones automáticas (REA) de la red de vigilancia radiológica ambiental y tasa de dosis media diaria y mensual

en lo referente al comportamiento de los aerosoles radiactivos en Barcelona. A continuación se enumeran los principales que han servido como punto de partida para la elaboración de esta memoria.

- En relación a las medidas en continuo de radiactividad medioambiental, cabe destacar la tesis doctoral presentada en la UPC por Guillem Cortès Rosell, publicada en 2001: "Aportaciones al estudio de los campos de radiación ionizante ambientales". En este trabajo se aportó información para mejorar el conocimiento de los campos de radiación ionizante ambiental de origen natural y contribuir así a una mejor gestión de las estaciones automáticas de vigilancia radiológica ambiental. Se hace especial énfasis en las variaciones de tasa de dosis ambiental, y su relación con diversas variables meteorológicas tales como la presión atmosférica, la concentración de radón en el aire y en la lluvia. Por otro lado, también se aportan las técnicas necesarias para determinar los factores de dosis que relacionan la concentración de radionucleidos de origen artificial depositados (por acción de la lluvia) en el terreno que rodea la estación del Campus Nord, con la tasa de dosis medida en cualquier posición de la torre meteorológica de la estación.

- El comportamiento del radón y su relación con el transporte de las masas de aire fue detallado en la tesis publicada durante el año 2009 en la UPC por Dèlia Arnold Arias "Study of the atmospheric radon concentration dynamics at the Spanish radiological surveillance stations and its application to air mass movements". En este trabajo se estableció la base de aplicabilidad de nuevos métodos para mejorar la vigilancia radiológica en España en el campo de la modelización atmosférica. La concentración de radón y sus descendientes en el aire fueron usados como trazador indicador del

comportamiento de las masas de aire. Por tanto uno de las principales características de este trabajo fue el uso de medidas de radón y su transporte como herramienta de validación para su uso en la red de vigilancia de la REA. Las dispersiones se pueden desarrollar mediante diferentes métodos y modelos. Teniendo en cuenta la demanda computacional y la exactitud que se necesitaba en el desarrollo de los cálculos, se eligió el modelo de dispersión lagrangiana FLEXPART.

- En cuanto a las medidas de concentración de actividad en la atmósfera recogidas en filtros, cabe destacar el artículo publicado en la revista *Journal of Environmental Radioactivity* en el año 2009 por I. Vallés, A. Camacho, X. Ortega, I. Serrano, S. Blázquez y S. Pérez: "Natural and anthropogenic radionuclides in airborne particulate samples collected in Barcelona (Spain)". En él se exponen los resultados obtenidos por el Laboratorio de Análisis de Radiactividad (LARA) del INTE de las medidas de actividad en el aire de radionucleidos tales como ^7Be , ^{210}Pb , ^{40}K , ^{214}Bi , ^{214}Pb , ^{212}Pb , ^{228}Ac y ^{208}Tl durante el período comprendido entre los años 2001 y 2005 en la ciudad de Barcelona. En este artículo se analizan los valores de las actividades de dichos elementos, se buscan correlaciones entre ellos, se realizan series temporales para estudiar su evolución estacional y se analizan los efectos de la lluvia en la detección de ^{137}Cs .

- En lo referente a la medida en continuo de la concentración de actividad en el agua de lluvia de los descendientes de vida corta del radón, es destacable el artículo publicado en la revista *Nukleonika* durante el año 2001 por Guillem Cortès, Josep Sempau y Xavier Ortega: "Automated measurement of radon daughters ^{214}Bi and ^{214}Pb in rainwater (Cortés et al., 2001)". En este artículo se exponen algunos resultados de concentración de actividad de ^{214}Bi y ^{214}Pb en el agua de lluvia en diferentes episodios de lluvia que tuvieron lugar en Barcelona durante el año 1999. Las medidas se han llevado a cabo mediante el uso de un equipo automático de medida de la concentración de radionucleidos gamma en el agua de lluvia en la ciudad de Barcelona.

1.3 Resumen

La estructura de la tesis, de acuerdo con los objetivos planteados en el apartado 1.1, se puede dividir en cuatro partes, que incluyen un total de ocho capítulos. La parte I es una introducción a los aerosoles radiactivos, y comprende los capítulos 1 y 2. La parte II está relacionada con la instrumentación y metodología seguida para la elaboración de la tesis. Se encuentra descrita en el capítulo 3. En la parte III se presentan los resultados obtenidos a través de los análisis estadísticos llevados a cabo con los datos de los aerosoles radiactivos, estimación de tiempos de residencia de estos y determinación de parámetros de velocidad de deposición seca y húmeda. Dichos resultados se presentan en los capítulos 4, 5 y 6. Los capítulos 7 y 8 corresponden a las conclusiones y referencias, respectivamente. Por último, en la parte IV se han incluido dos anexos. El anexo A es referente a las ecuaciones generales que siguen los radionucleidos estudiados en este trabajo. El anexo B tiene que ver con los criterios de elección de radioisótopos para el cálculo del tiempo de residencia según el método del cociente de actividades.

A continuación se resume brevemente cada uno de los capítulos de la tesis:

En el segundo capítulo se realiza una introducción a los aerosoles radiactivos en la que se presenta una versión global del concepto de aerosol, así como la explicación acerca del origen y evolución de los diferentes aerosoles radiactivos atmosféricos. Así, se ha realizado un trabajo de revisión de bibliografía publicada tanto por el grupo de investigación de radiactividad atmosférica del INTE

como por otros grupos externos, presentándose resultados de trabajos anteriores en relación a la caracterización radiológica. Asimismo, se presenta la caracterización topográfica y climatológica de la ciudad de Barcelona para entender la complejidad del escenario en el que se desarrollarán las medidas y estudios radiológicos realizados en este trabajo.

El tercer capítulo es una descripción de la metodología experimental utilizada para el desarrollo de la tesis. Por lo tanto, se explica detalladamente cada uno de los equipos que conforman la instrumentación utilizada para la medida de los aerosoles radiactivos. Igualmente, se detallan los diferentes métodos que pueden ser utilizados para el cálculo de diferentes parámetros que caracterizan el comportamiento de los aerosoles, concretamente tiempo de residencia y deposición. Además se detalla el software utilizado para realizar el cálculo de orígenes de las masas de aire.

Para la elaboración del cuarto capítulo se han utilizado datos obtenidos de la instrumentación propia del INTE y diversas herramientas de software para el tratamiento estadístico de los datos tanto radiológicos como meteorológicos. Se presenta un apartado para cada uno de los radionucleidos que la instrumentación del INTE nos permite detectar. Estos elementos son los descendientes del ^{222}Rn , ^7Be , ^{210}Pb , ^{40}K y ^{137}Cs . El trabajo por tanto ha consistido en la recopilación de datos tanto radiológicos como meteorológicos, clasificación de los mismos y posterior análisis estadístico.

En el quinto capítulo, se han realizado estimaciones sobre el tiempo de residencia de los aerosoles radiactivos que llegan a la ciudad de Barcelona. Existen diversos métodos de cálculo del mismo. Éstos han sido descritos en el tercer capítulo. Durante el desarrollo experimental de este trabajo, para la elección del método, fue necesario adaptarse a la instrumentación y posibilidades existentes en el INTE.

En el sexto capítulo se presentan los cálculos que se han realizado para estimación de velocidad de deposición seca y húmeda. Para ello se han utilizado los datos que se han obtenido mediante el equipo de deposición seca y húmeda detallado en el tercer capítulo.

En el séptimo capítulo se ha realizado una síntesis de las conclusiones generales de los resultados extraídos durante el trabajo de investigación llevado a cabo en esta tesis

Por último, el octavo capítulo es un listado con las referencias bibliográficas consultadas en la literatura científica para la realización de este trabajo.

2 Aerosoles radiactivos

2.1 Introducción

Desde el descubrimiento de la radiactividad, el ser humano se ha interesado por cuantificar la magnitud de los campos de radiación ionizante que le envuelven, estudiar su interacción con el medio material, y determinar sus efectos en los seres vivos. Los niveles de radiación a los que está sometido una persona tienen su origen en las fuentes naturales o artificiales, pero en condiciones normales, alrededor del 75% de la dosis media en humanos es debida a la radiactividad natural. En esta introducción se describen las fuentes de radiactividad natural y artificial. En la figura 3 se muestra un resumen de la contribución de las diversas fuentes de exposición natural y artificial a la dosis recibida por la población. Las fuentes artificiales son básicamente la nuclear y las derivadas de los usos médicos. El resto de fuentes puede calificarse como naturales. Tanto las fuentes naturales como las artificiales no presentan, ni en sus características físicas ni en los efectos que provocan en la salud de las personas, ninguna diferencia entre sí, ya que la interacción de las partículas alfa, beta o gamma con el organismo humano es independiente de su origen, pudiendo tanto unas como otras, dañar nuestras células y provocar modificaciones irreversibles en su constitución y en sus funciones vitales.

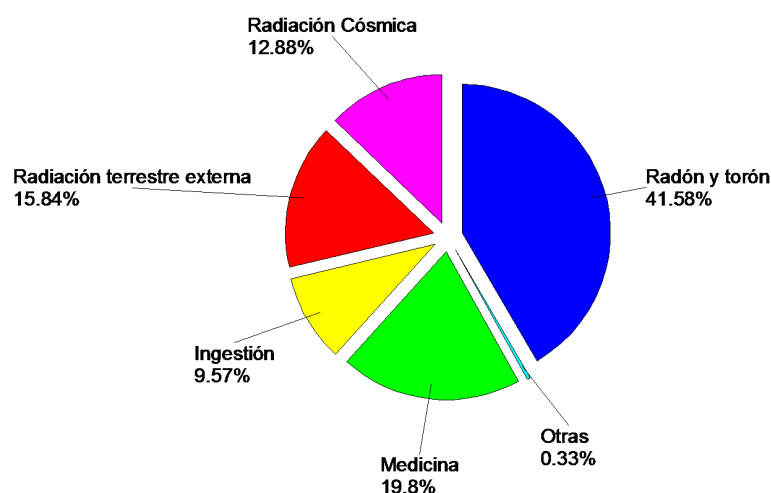


Figura 3: Fuentes de exposición radiactiva de origen natural y artificial (UNSCEAR, 2008)

El aire es un medio natural de gran importancia desde el punto de vista radiológico ya que los aerosoles radiactivos pueden ser transportados a grandes distancias y depositarse posteriormente en el suelo o ser inhalado. Este trabajo se centra en el estudio de la radiación en el medio aéreo a través de los aerosoles. Se estima que más de la mitad de la tasa de dosis de radiactividad recibida por los seres humanos está relacionada con la inhalación de partículas radiactivas existentes en los aerosoles (UNSCEAR, 2000). El término "aerosol" fue acuñado en 1920 como análogo al término "hidrosol" (suspensión de partículas sólidas en un líquido estable). Un aerosol se define como un conjunto de partículas líquidas o sólidas de entre 0.001 y 100 μm , suspendidas en un gas (Hinds, 1982). Cuando se habla de aerosoles, este gas suele ser el aire. Por tanto, sus propiedades pueden afectar no solo a la visibilidad y al clima en general, sino que también puede tener influencia en

la salud humana y calidad de vida, ya que dan lugar a un amplio rango de fenómenos tales como polvo, humo, niebla o vapor. A pesar de que la palabra aerosol se utiliza popularmente para los nombrar los “sprays” a presión, ésta es la palabra más aceptada científicamente para partículas en suspensión en medios gaseosos. Los aerosoles que contienen radionucleidos son conocidos como aerosoles radiactivos.

El tamaño de partícula es el parámetro físico más importante que caracteriza el comportamiento de un aerosol. La mayor parte de las propiedades de un aerosol dependen del tamaño de la partícula. Además, la mayoría de los aerosoles cubren un amplio rango de tamaño de partículas. Atendiendo al tamaño, los aerosoles se pueden clasificar en tres modas diferentes, especificadas a continuación:

- Moda nucleación o moda Aitken: los núcleos Aitken son partículas cuyo diámetro es menor de $0.1 \mu\text{m}$. Se originan principalmente de la condensación y coagulación de vapores y gases saturados. Esta moda suele tener un porcentaje bajo de la masa total del aerosol.
- Moda de acumulación: partículas cuyo diámetro se encuentra entre $0.1 \mu\text{m}$ y $2.0 \mu\text{m}$. La mayor parte de partículas radiactivas se adhieren a partículas en esta moda ya que representa un alto porcentaje del número total de partículas del aerosol.
- Moda gruesa: partículas con diámetro mayor de unas $2.0 \mu\text{m}$. En esta moda, casi todas las partículas se originan mediante procesos mecánicos. El número de partículas en esta moda es muy bajo en comparación con las que se encuentra en la moda de acumulación.

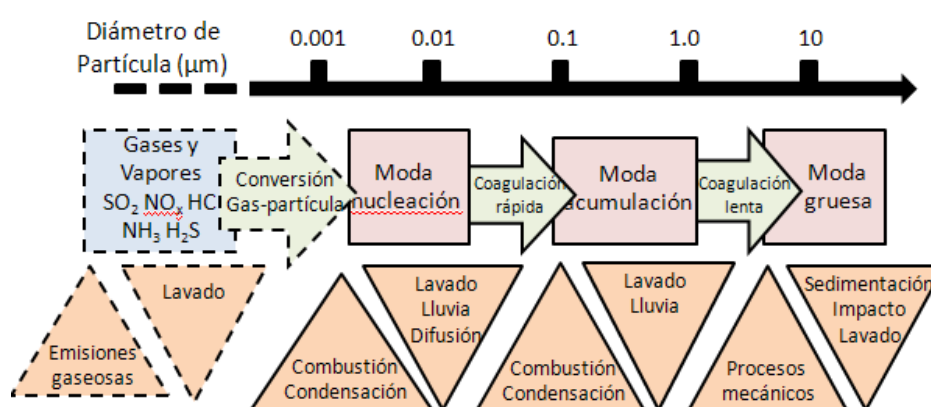


Figura 4: Rangos de tamaños de partículas para aerosoles

Las partículas de los aerosoles crecen en tamaño principalmente mediante procesos de coagulación, tal y como se observa en la figura 4. En los procesos iniciales de conversión de gas a partícula, la condensación de gases y vapores tiene como consecuencia la formación de partículas en su moda de nucleación. A partir de este momento, las partículas de los aerosoles tienen una probabilidad de unirse muy alta al colisionar unas con otras. Las colisiones entre dos partículas tienen como resultado la formación de una nueva partícula de tamaño más grande. Este proceso, llamado coagulación, repercute en la formación de partículas de mayor tamaño. La coagulación ha de distinguirse de la condensación, que es la deposición de material en fase de vapor sobre la partícula.

Existen diferentes maneras de deposición de las partículas en el suelo, tal y como se indica en la figura 4. En la deposición seca, las partículas de los aerosoles se depositan en el suelo al adherirse a pequeñas partículas sólidas, en ausencia de precipitación. La deposición húmeda se puede producir mediante dos procesos: *rainout* y *washout*. En el proceso de *rainout*, la partícula del aerosol se incorpora a una gota de agua de lluvia que ya existía previamente, durante su caída. En el proceso de *washout*, la partícula del aerosol actúa como núcleo para la condensación de gotas. Por lo tanto, la principal diferencia entre ambos procesos es la pre-existencia de la gota de agua. La *difusión* describe la propagación de partículas mediante movimientos desde regiones con una mayor concentración hacia regiones de menor concentración. La *sedimentación* es el proceso por el cual las partículas, se depositan en el suelo por acción de la gravedad. Por último, el *impacto* es el proceso según el cual las partículas por encima de una velocidad se desvían de un flujo curvilíneo de aire, depositándose así en el suelo.

Las diferentes regiones en la curva de la velocidad de deposición (figura 5) demuestran la importancia de los diferentes mecanismos en la deposición de partículas. En dicha figura los puntos oscuros simbolizan las medidas experimentales en exterior mientras que los puntos claros representan las medidas experimentales en laboratorio. La línea continua es la velocidad terminal de la partícula. En general, la deposición seca de las partículas de aerosol en la superficie se determina por los procesos físicos de sedimentación por gravedad, impacto por fuerzas inerciales, intercepción y difusión Browniana. Para partículas pequeñas (hasta $0.1 \mu\text{m}$) los fenómenos Brownianos provocan una elevada deposición. Para partículas mayores (entre $0.1 \mu\text{m}$ y $1 \mu\text{m}$), los efectos de sedimentación dominan porque la velocidad terminal aumenta con el tamaño. En el tamaño intermedio el rango de impacto e intercepción son importantes. Es en esta región intermedia donde existe mayor incertidumbre acerca del comportamiento de la velocidad de deposición. Para partículas grandes (mayores de $1 \mu\text{m}$) el efecto dominante es gravitacional (Nicholson, 1988).

Igualando las fuerzas gravitatoria y de resistencia, se puede llegar también a una expresión de la velocidad de deposición seca y húmeda de las partículas atmosféricas en función del diámetro de partículas (Hinds, 1982), de manera que las partículas de un diámetro mayor presentarán una velocidad de deposición mayor, según la ecuación 1:

$$V_d = \frac{d_p^2}{18\eta}(\rho_p - \rho_{air})g \quad (1)$$

donde d_p es el diámetro de la partícula, en cm, ρ_p es la densidad de partículas en $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$, ρ_{air} es la densidad del aire, en $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ($\rho_{air}=0.001293 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$), η es la viscosidad del aire ($\eta=181\cdot 10^{-6} \text{ g}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$) a 20°C y g es la aceleración de la gravedad ($g=981 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-2}$). La velocidad de deposición, V_d se expresa en $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$.

Este apartado supone, además de una introducción teórica al concepto de aerosoles radiactivos, una clasificación de los mismos. La clasificación típica existente en la literatura se realiza atendiendo su origen, que puede ser natural o artificial. Por tanto, en el punto 2.2 se explican los aerosoles de origen natural, que a su vez pueden dividirse en tres subgrupos en función de su propia naturaleza y características: cosmogénicos, con cadena de desintegración, y radiactivos de elementos estables. En el punto 2.3 se detallan los aerosoles artificiales, procedentes de fuentes de radiación debidas a la actividad humana. En el apartado 2.4 se explican los aerosoles surgidos a partir de materiales

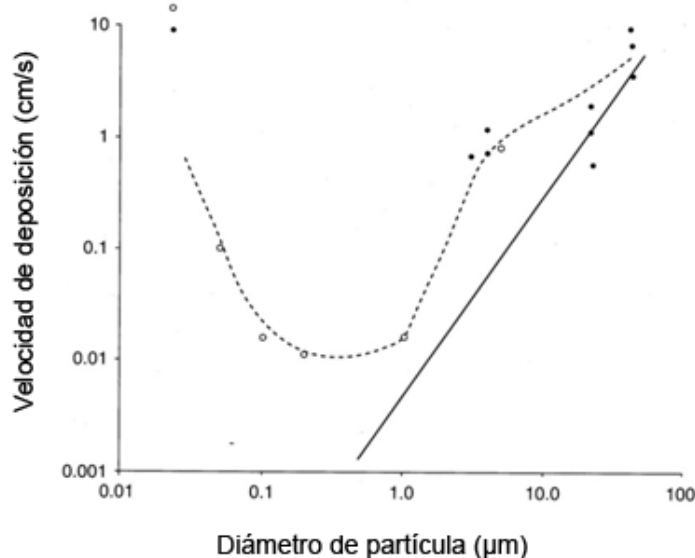


Figura 5: Relación entre la velocidad de deposición de partículas de aerosoles en césped y el tamaño de las mismas (McMahon and Denison, 1979)

TENORM, en los cuales la concentración de radiactividad natural sufre un incremento debido a la aplicación de tecnología industrial. Y por último, en el punto 2.5 se describen algunos de los estudios realizados previamente como caracterización de este tipo de aerosoles en la ciudad de Barcelona, y que han supuesto una importante base en el trabajo de investigación desarrollado en esta tesis.

2.2 Aerosoles radiactivos naturales

2.2.1 Aerosoles radiactivos cosmogénicos

La radiación cósmica es aquella cuyo origen se debe directa o indirectamente a la radiación que proviene del espacio extraterrestre y que incide en la atmósfera terrestre. La radiación que proviene directamente del espacio exterior se denomina radiación cósmica primaria. Básicamente son protones de alta energía (90%), iones de ^4He (10%) y por último partículas pesadas, electrones, fotones y neutrinos, en proporciones muy bajas. Por otro lado, cuando la radiación cósmica primaria interactúa con los núcleos atómicos existentes en la atmósfera, las partículas secundarias y la radiación electromagnética generadas son conocidas como radiación cósmica secundaria. Los radionucleidos producidos se denominan radionucleidos cosmogénicos. La radiación cósmica secundaria debe su origen a las reacciones de espalación entre las partículas más energéticas de la radiación cósmica primaria y los núcleos de los átomos del aire. Los productos de estas reacciones dan lugar a los denominados radionucleidos cosmogénicos, como son el ^3H , ^7Be , ^{10}Be , ^{14}C , ^{22}Na y ^{24}Na . De todos ellos, el ^7Be tiene una especial relevancia pues su presencia es muy común en

equipos destinados a la detección de emisores gamma en el aire. Una vez que se ha formado en la troposfera, este se adhiere con rapidez a las partículas de los aerosoles. Por tanto, puede ser utilizado como trazador en la descripción de procesos medioambientales tales como cálculo del tránsito de aerosoles, tiempos de residencia en la troposfera y velocidades de deposición. El período de semidesintegración del ^7Be es de 53.3 días y su tamaño, como la mayoría de los contaminantes en la atmósfera, se encuentra en la moda de acumulación de los aerosoles ya que su AMAD es de entre 0.7 y 1.1 μm (Papastefanou and Ionannidou, 1995).

La tasa de producción de cosmogénicos aumenta en función de la altura y por tanto, es muy alta en la parte superior de la estratosfera, disminuyendo significativamente su producción en la alta troposfera (Feely et al., 1989). Así pues, el aire que entra en la troposfera y alcanza la superficie terrestre puede transportar cantidades significativas de ^7Be . Este tipo de corrientes son más frecuentes en verano por tanto en los meses cálidos existirá una mayor concentración de ^7Be en la superficie terrestre (figura 6). Durante estos meses el calor solar de la superficie terrestre provoca el calentamiento del aire al estar en contacto con la superficie. Este aire caliente tiende a ascender, produciéndose por tanto un ciclo de circulación convectiva, transportando aire de la superficie terrestre hacia arriba y aire de las capas altas de la tierra hacia abajo. Así, tanto en el hemisferio norte como en el hemisferio sur, las concentraciones de ^7Be alcanzan sus máximos durante la temporada de calor y mínimo durante las temporadas frías. En el hemisferio sur, los máximos de concentración de ^7Be tienen lugar durante los meses de diciembre, enero y febrero, dado que cuando el verano ocurre en el hemisferio sur, es invierno en el hemisferio norte y viceversa.

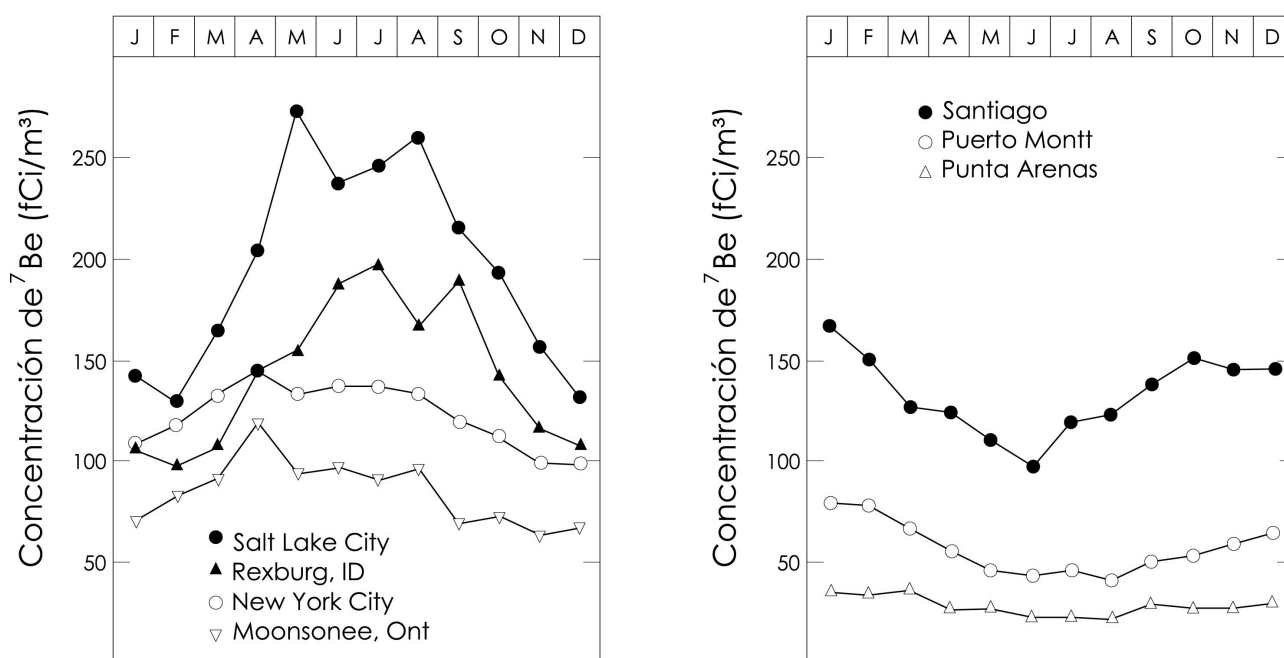


Figura 6: Concentraciones de actividad medias mensuales de ^7Be en fCi/m³ (10^{-15} Ci/m³), en cuatro lugares del hemisferio norte (izquierda) y tres lugares del hemisferio sur (derecha) (Feely et al., 1989)

La intensidad de los rayos cósmicos en la órbita de la tierra está inversamente relacionado con la actividad solar (O'Brien, K., 1979). Por tanto, un descenso de la intensidad de rayos cósmicos, y en consecuencia, un descenso de la producción de ciertos elementos como por ejemplo el ^7Be , va acompañado de un incremento en la actividad solar. Este proceso físico se debe a que la intensidad solar produce un campo electromagnético que reduce la producción de los radionucleidos de origen cosmogénico ya que el campo magnético del sol ejerce un efecto de blindaje sobre la tierra. Así, se observa una correlación negativa entre el ^7Be y las manchas solares, tal y como se puede apreciar en la figura 7 (Papastefanou and Ioannidou, 2004).

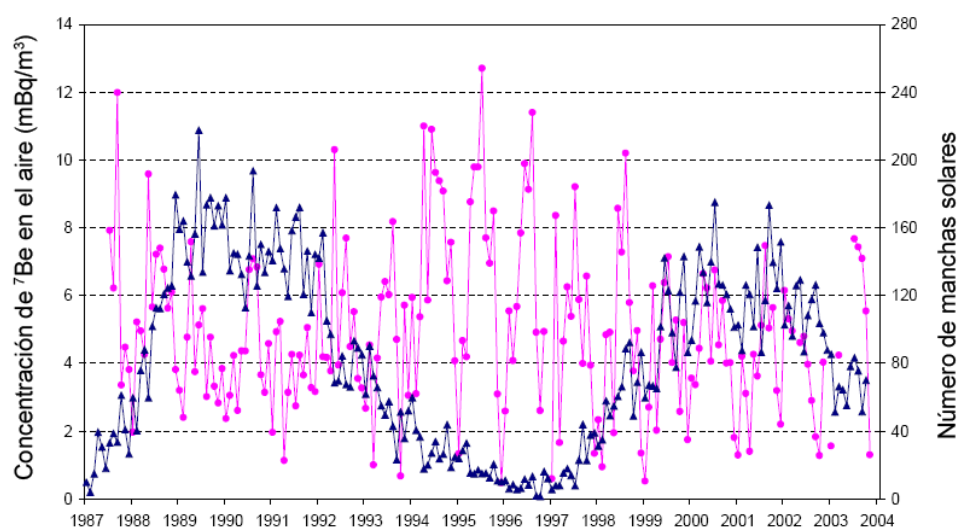


Figura 7: Concentración de ^7Be (rosa) frente al número de manchas solares (azul) entre 1987 y 2003 (Papastefanou and Ioannidou, 2004)

La concentración de ^7Be presenta unos ciclos temporales de unos 11 años, que a su vez presentan correlación con la actividad solar y manchas solares existentes. Una mancha solar es una región del sol con un fuerte campo magnético y menos temperatura (3500-4500 K) que la fotosfera (5800 K). El campo magnético produce un efecto de blindaje a los rayos cósmicos responsables de la generación de ^7Be . Para observar con una perspectiva temporal amplia la progresión del número de manchas solares, se ha representado la evolución de estas durante los últimos 30 años (figura 8). Estos datos han sido obtenidos a través del SIDC (Solar Influences Data Analysis Center), que ofrece a través de su página web los datos numéricos acerca de manchas solares diarias, mensuales, y anuales que han tenido lugar desde el año 1750. La predicción de ciclos solares realizada por la National Aeronautics and Space Administration (NASA), indica un próximo máximo de 58 manchas solares en julio de 2013, el menor en los últimos 200 años. En la figura 9 se muestra dicha predicción.

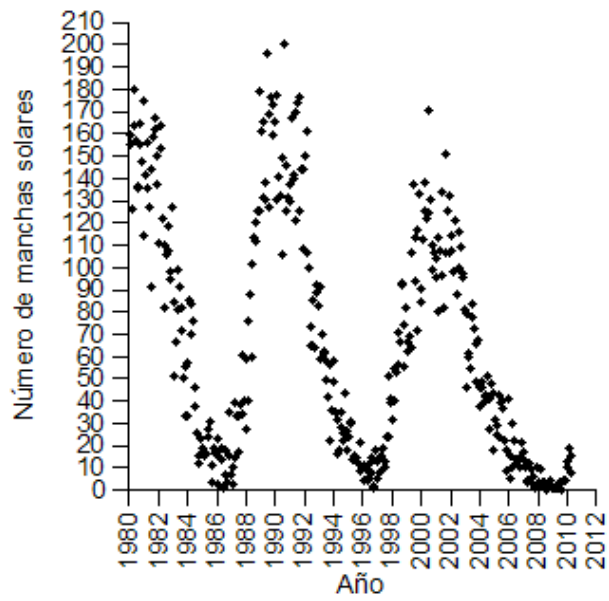


Figura 8: Evolución temporal del número de manchas solares desde 1980

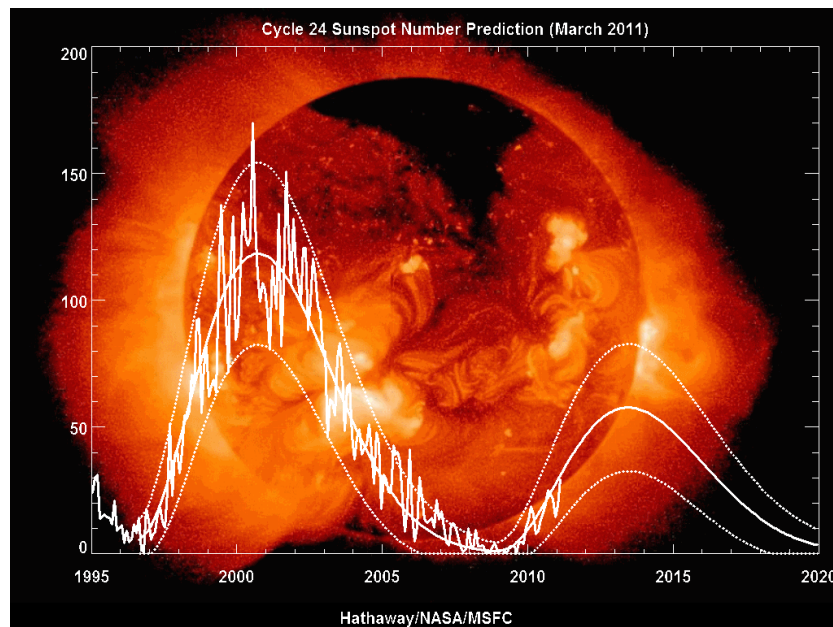


Figura 9: Predicción del número de manchas solares realizada por la NASA durante marzo de 2011

La figura 10 muestra la concentración de actividad media de los radionucleidos naturales ^7Be , ^{210}Pb y el ratio $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ obtenida por el Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) (Wershofen and Arnold, 2005) en 2003 en la ciudad alemana de Braunschweig. En esta gráfica, el valor más alto de ^7Be ocurre en la semana 38 del año 2003 (semana 0338), que transcurre durante el período otoñal y no, como cabría esperar, a la primavera o principios de verano cuando la troposfera es más permeable a los radionucleidos cosmogénicos. El análisis de las trayectorias indica que algunos días antes de la muestra, se produjo una irrupción de masas estratosféricas con ^7Be desde Canadá, que llega al norte de Alemania durante los 2.5 primeros días de la toma de la muestra. Estas irrupciones de aire estratosférico en la capa de mezcla ocurren más o menos regularmente y pueden provocar este tipo de fenómenos. El promedio del ratio de $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ parece que sigue la tendencia del ^7Be con un valor más alto durante el verano, dado que la concentración de ^{210}Pb en este estudio parece ser bastante estable y la tendencia sigue por tanto la pauta marcada por el ^7Be .

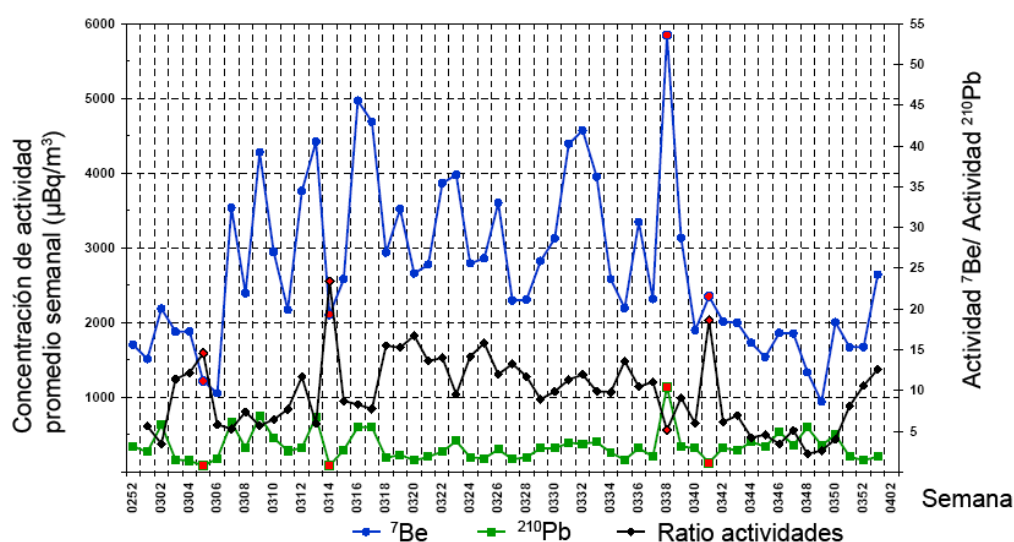


Figura 10: Concentración de actividad media semanal de ^7Be , ^{210}Pb y ratio $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ en Braunschweig durante 2003. (Wershofen and Arnold, 2005)

2.2.2 Aerosoles radiactivos procedentes de elementos con cadena de desintegración

La radiación ionizante terrestre de origen natural existe desde la formación del planeta tierra. Su fuente son los denominados radionucleidos primordiales que consisten en núcleos radiactivos presentes en la corteza e interior de la tierra desde su formación, junto con sus descendientes radiactivos. Existen cuatro series radiactivas naturales, de las cuales solo tres de ellas se encuentra en la naturaleza al estar encabezadas por radionucleidos con un periodo de semidesintegración del mismo orden de magnitud de la vida de la tierra. Los elementos cabeza de serie de las tres familias radiactivas son: ^{238}U , ^{235}U y ^{232}Th . La desintegración radiactiva de cada uno de estos tres radionucleidos produce un nucleido residual que, a su vez, también se desintegra, continuando el proceso de desintegración radiactiva hasta llegar, en cada caso, a un nucleido final estable. Se

originan así las familias radiactivas, formadas por una secuencia de radionucleidos relacionados a través de procesos de desintegración en cascada. La cuarta serie, denominada serie del neptunio, tiene por radionucleido inicial al ^{241}Pu , que dispone de un periodo de semidesintegración de 13.2 años. Esta serie natural debe su nombre al descendiente que posee el periodo de semidesintegración más largo ($1,62 \times 10^5$ años), el ^{237}Np . Del conjunto de componentes de la cadena de desintegración solo permanece en la tierra, en cantidades significativas, el descendiente estable ^{209}Bi , que es el último componente de la serie radiactiva.

La serie del ^{238}U (figura 16) consta de 14 elementos radiactivos, excluido el cabeza de serie, y su elemento final estable es el ^{206}Pb . El ^{222}Rn es un gas noble de 3.82 días de período de semidesintegración, descendiente del ^{226}Ra . Cuando el ^{226}Ra se desintegra, parte del radón producido se desplaza a la superficie del suelo, donde puede entrar a la atmósfera mediante el proceso conocido como exhalación (figura 11).

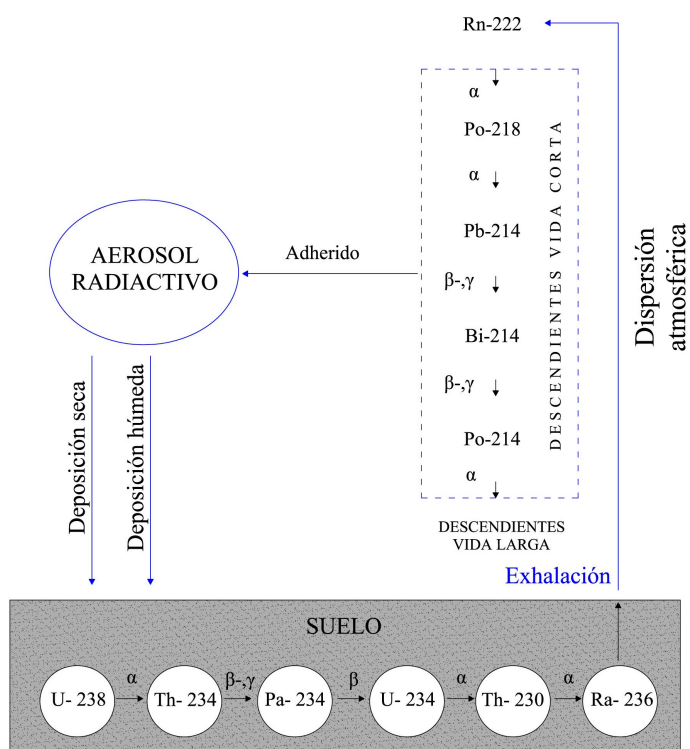


Figura 11: Ciclo del radón y sus descendientes

El transporte en el subsuelo se debe normalmente a un proceso de difusión gaseosa, pero bajo ciertas situaciones de advección, un gradiente de presión puede ser el principal mecanismo de transporte del ^{222}Rn . Los descendientes del ^{222}Rn se dividen en los descendientes de vida corta y los de vida larga. Los descendientes de vida corta son el ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi y ^{214}Po . En la figura 12 se observa la evolución mensual de la concentración de descendientes de vida corta del ^{222}Rn entre abril de 1994 y abril de 1999 en Bucarest (Celestina, 2004). Durante los meses cálidos existe un descenso de la concentración de estos radionucleidos.

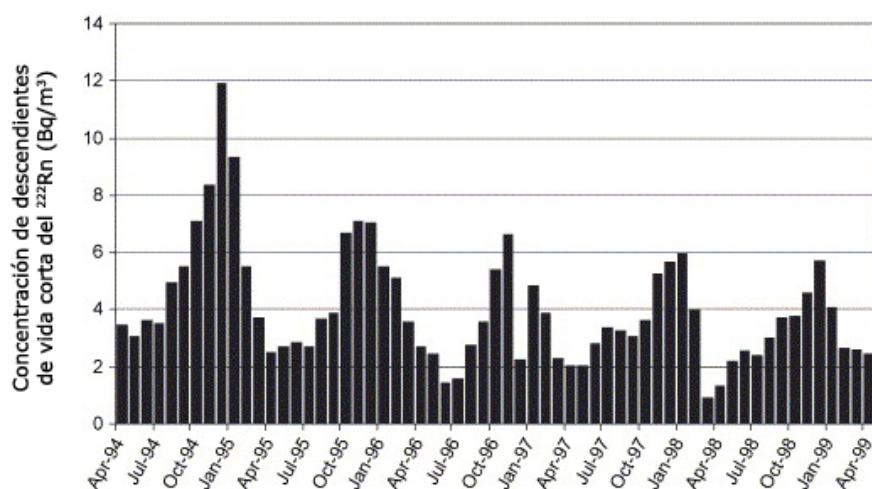


Figura 12: Promedio mensual de actividad de los descendientes de vida corta del ^{222}Rn en Bucarest entre abril de 1994 y abril de 1999 (Celestina, 2004)

Los descendientes de vida larga son el ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po y ^{206}Pb (estable). En la figura 13 se puede observar la evolución del promedio mensual de actividad de ^{210}Pb en Jungfrauoch (Suiza).

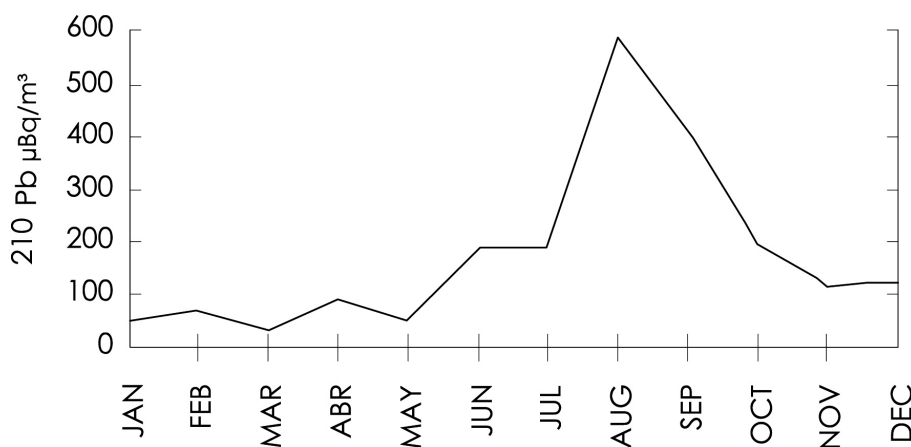


Figura 13: Promedio mensual de concentración de ^{210}Pb en Jungfrauoch (Suiza) (Gaggeler and Seibert, 1995)

Al contrario que en el caso de los descendientes de vida corta, durante los meses cálidos hay un evidente incremento en la concentración de actividad de ^{210}Pb . El motivo puede ser la existencia de ^{210}Pb en la alta troposfera, tal y como se puede apreciar en la gráfica 14 (Kownacka, 2002). Al igual que en el caso del ^7Be , durante los meses de verano, el aire caliente próximo a la superficie terrestre tiende a ascender, produciéndose un ciclo de circulación convectiva que transporta masas de aire

con mayor concentración de ^{210}Pb hacia la superficie terrestre desde las capas altas de la troposfera. Este efecto no parece relevante en el caso de los descendientes de vida corta del ^{222}Rn dada la baja concentración de este radionucleido en las capas altas de la troposfera. El ^{222}Rn exhala desde el suelo, siendo los bajos períodos de semidesintegración del propio ^{222}Rn y sus descendientes de vida corta los que provocan que sea poco probable la existencia de estos radionucleidos en la parte superior de la troposfera, situada a unos 15 km. de altura. Tanto el ^{210}Pb como el ^7Be pueden ser tratados como indicadores del transporte e intercambio de masas de aire atmosféricas entre la troposfera y la estratosfera.

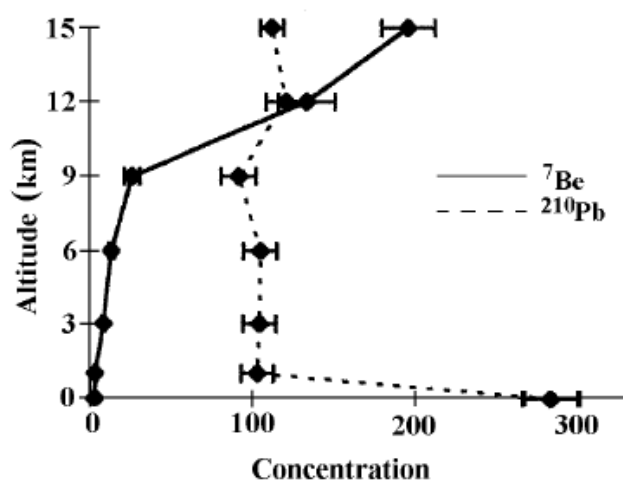


Figura 14: Distribución vertical atmosférica del promedio de concentraciones de ^7Be (mBq/m³) y ^{210}Pb (mBq/m³) entre 1987 y 1998 en Polonia (Kownacka, 2002)

Existen otras fuentes naturales que pueden ser causantes de una concentración superior a lo habitual de algunos elementos radiactivos con cadena de desintegración. La erupción de un volcán puede suponer un incremento extra de la actividad de ^{226}Ra en el aire. Esto puede ser utilizado como indicador de la actividad de un volcán. El desequilibrio entre el ^{226}Ra y el ^{230}Th puede ser utilizado para realizar cálculos de la antigüedad de la roca volcánica (Condomines, 2005). Otros fenómenos, tales como la combustión de carbón, suponen una emisión extra de ^{222}Rn a la atmósfera.

La serie del ^{235}U (figura 17) consta en su rama principal, de 11 elementos radiactivos, y su elemento final estable es el ^{207}Pb . La formación del gas ^{219}Rn tiene poca relevancia respecto al ^{222}Rn dado que el ^{235}U tiene una abundancia de tan solo un 0.7%, mientras que el 99.3% restante pertenece al ^{238}U .

La serie del ^{232}Th (figura 18) consta de 10 radionucleidos, excluido el cabeza de serie, y su elemento final estable es el ^{208}Pb . El ^{220}Rn es otro gas noble, descendiente del ^{232}Th , y tiene un período de semidesintegración de 55.6 segundos. Sus descendientes son también radiactivos: ^{216}Po , ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{212}Po , ^{208}Tl y ^{208}Pb . De ellos, el ^{216}Po , ^{212}Po y ^{208}Tl son de vida corta. El ^{212}Bi y ^{212}Pb tienen 1.01 y 10.64 horas respectivamente de período de semidesintegración. El ^{208}Pb es el elemento final estable.

La formación de los aerosoles de descendientes del radón y torón en la atmósfera se produce según dos mecanismos. Después de la formación del primer descendiente ^{218}Po por desintegración del

gas ^{222}Rn , dicho radionucleido reacciona muy rápido (en un tiempo inferior a 1s) con los gases y vapores de aire, y se transforman en pequeñas partículas, llamadas clusters o radionucleidos libres, con diámetros entre 0.5 y 5 nm, y que se denominan fracción libre. Después de la formación del cluster, los radionucleidos pueden adherirse a las partículas de los aerosoles existentes en la atmósfera, en un tiempo de entre 1 y 100 s, formando el aerosol radiactivo de los descendientes del radón y del torón (figura 15) (Porstendorfer, 1993), denominada fracción adherida.

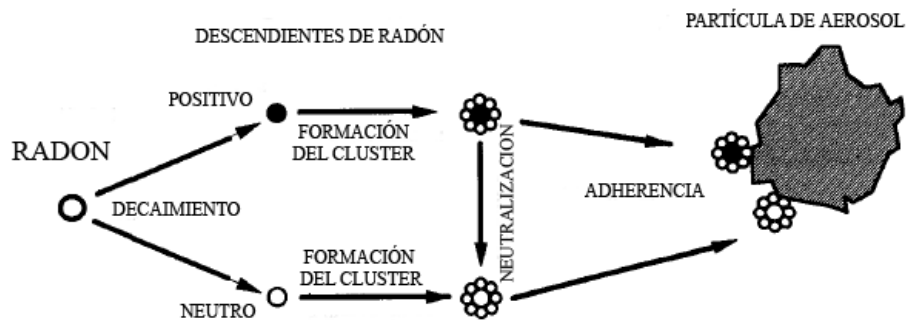


Figura 15: Representación esquemática de la desintegración del radón y posterior formación de partículas de aerosoles

Numerosas medidas se han realizado para la caracterización del espectro dimensional de la región de los descendientes del radón en estado libre bajo distintas condiciones medioambientales. En el trabajo realizado por Vargas et al. (2005) se detalla la intercomparación realizada entre diferentes técnicas para el cálculo del tamaño del ^{218}Po , ofreciendo como resultado un diámetro medio de valor 0.85 nm. En cuanto al tamaño de la fracción adherida, sus valores oscilan entre 250 y 450 nm (Porsterdorfer et al., 2000).

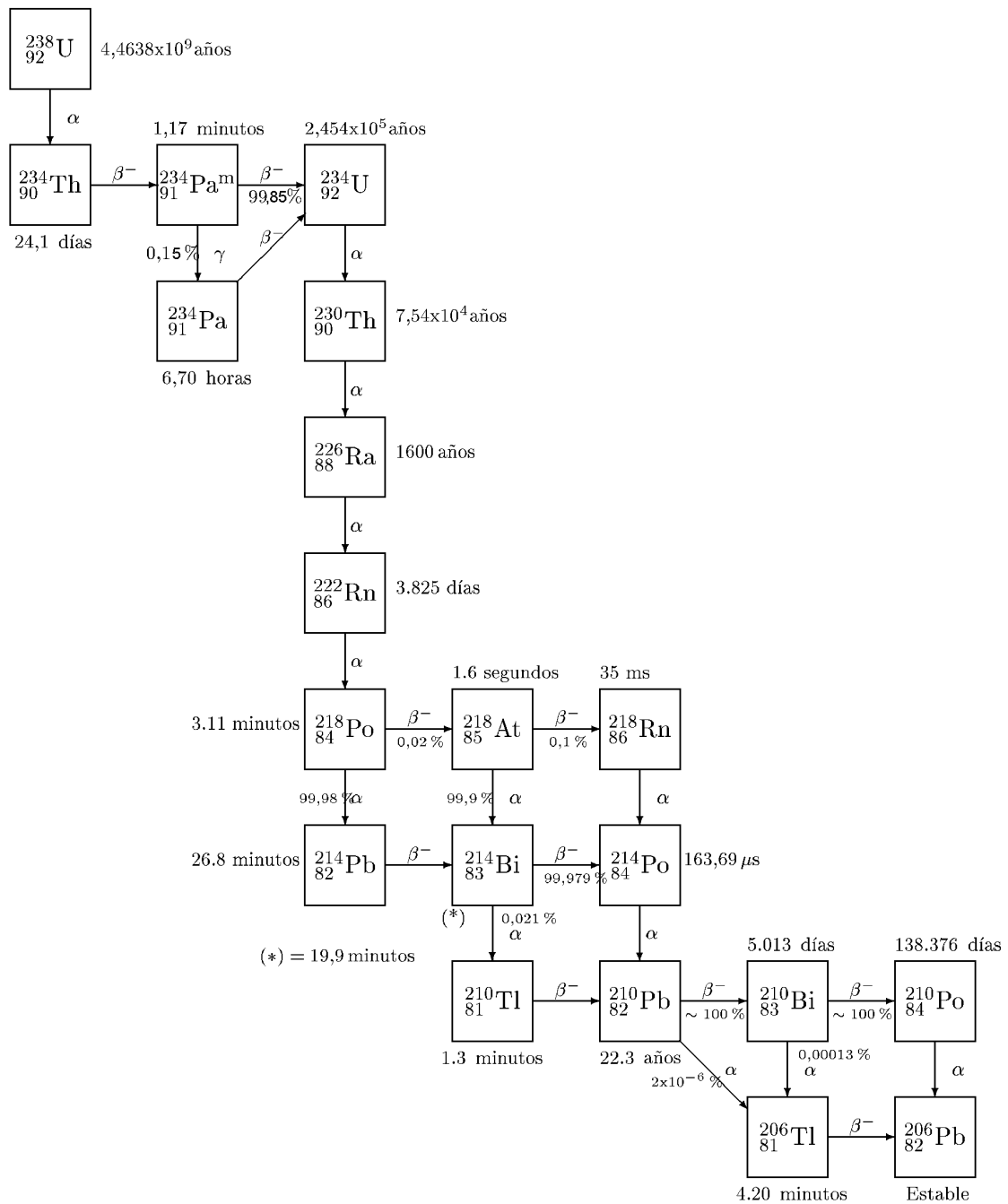


Figura 16: Cadena de desintegración del ^{238}U , donde se presentan las diferentes vías de desintegración, su probabilidad y período de semidesintegración

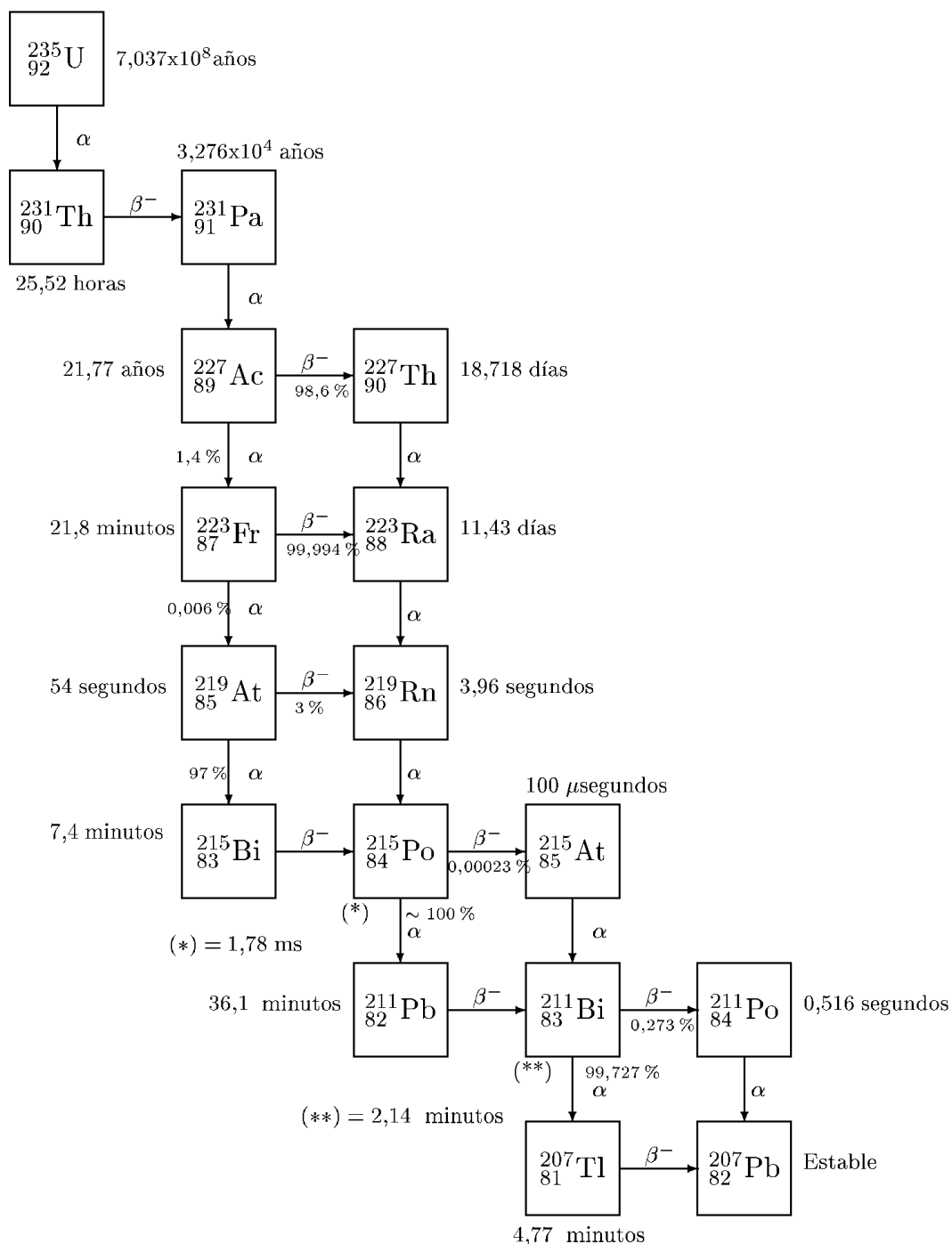


Figura 17: Cadena de desintegración del ^{235}U , donde se presentan las diferentes vías de desintegración, su probabilidad y período de semidesintegración

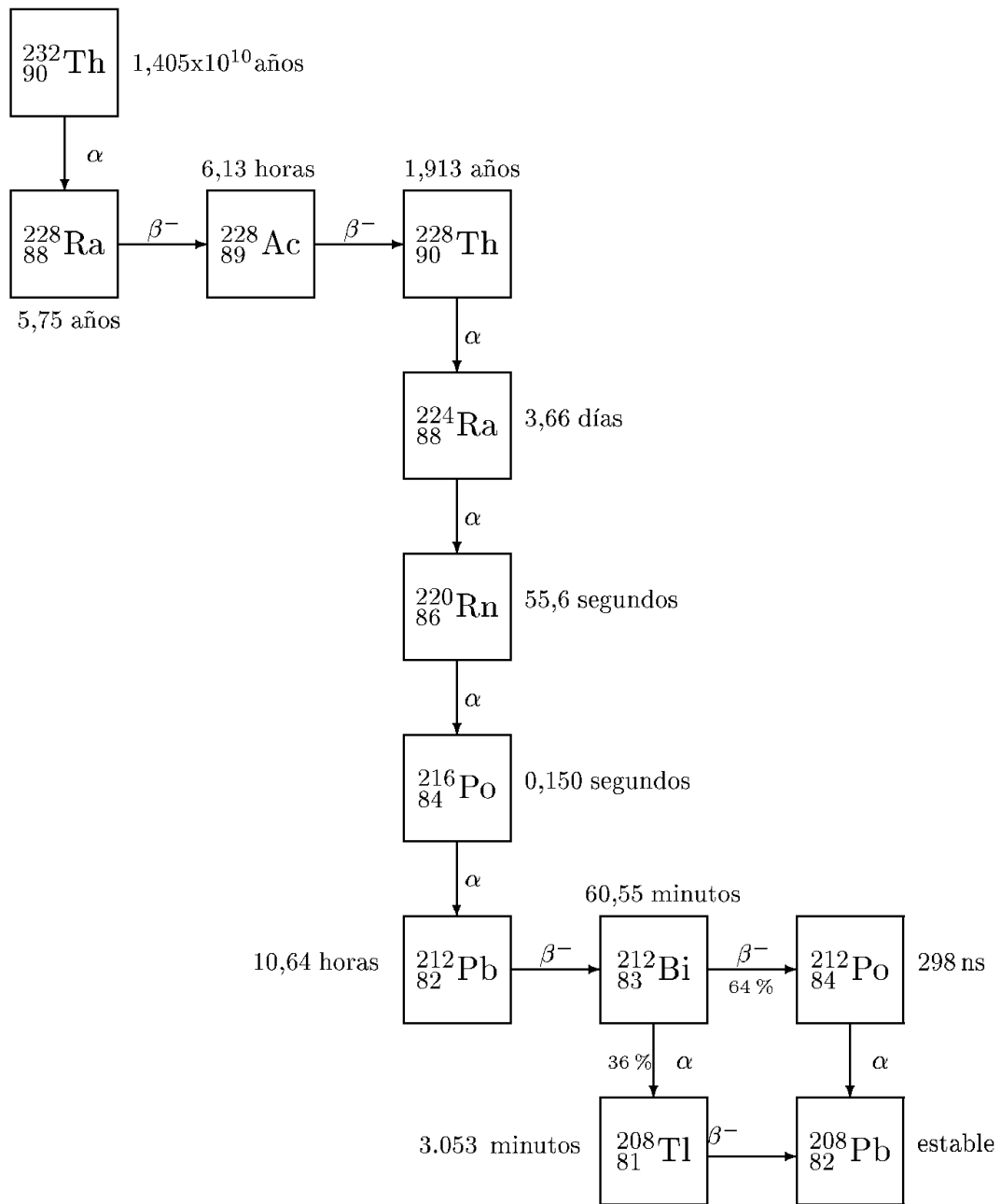


Figura 18: Cadena de desintegración del ^{232}Th , donde se presentan las diferentes vías de desintegración, su probabilidad y período de semidesintegración

Tabla 1: Modos de desintegración de los radionucleidos de la cadena de desintegración del ^{238}U y energía de la radiación generada en keV. Entre paréntesis, la fracción de ramificación, en %. En el caso de partículas β , se indica la energía máxima

Radionucleido	Período	α	β	γ
^{238}U	4.46×10^9 años	4147 (23) 4196(77)	-	16.2 (4.1), 13(3)
^{234}Th	24.1 días	-	106.3 (7.6), 106.7 (19.2) 199.1(70.3)	13.3(3.9), 16.6(4.4), 63.3(3.8), 92.6 (5.41)
$^{234}\text{Pa}^m$	4.46×10^9 años	4147 (23) 4196(77)	-	16.2 (4.1), 13(3)
^{234}Pa	6.70 horas	-	414.5(8), 473.6 (33) 474.1(12.4), 644.4(19.4) 1173.3(3.9), 1207.6(4.8)	13.6(43), 17.1(52), 20.3(11.8) 94.7(15.7), 98.4(23.3), 131.3(20) 569.5(10.7), 883.2(12)
^{234}U	2.454×10^5 años	4723(27.5) 4776(72.5)	-	53.2 (0.12)
^{230}Th	7.54×10^4 años	4621(23.4) 4687(76.3)	-	67.7 (0.4), 143.9(0.05)
^{226}Ra	1600 años	4601.4(5.55) 4678.4(94.45)	-	83.8(0.3), 186.1(3.3)
^{222}Rn	3.825 días	5489.7(99.92)	-	510(0.07)
^{218}Po	3.11 min	6114.7(99.98)	264(0.020)	-
^{214}Pb	26.8 min	-	728.8(40.5), 987.1(46) 1023(9.3)	74.8(6.5), 77.1(11), 241.9(7.5) 295.1(19.2), 351.9(37.1)
^{218}At	1.6 s	6654(6) 6695(90) 6748(4)	2883(0.01)	-
^{218}Rn	35 ms	6534.9(0.16) 7133.1(99.8)	-	609.3(0.12)
^{214}Bi	19.9 min	5450(0.011) 5513(0.0023)	1507.5(16.9), 1992.4(17.5) 3272(19.9)	609.3(46.1), 768.4(4.9), 934(3.2) 1120.3(15), 1238.1(5.9), 1378.7(4) 1764.5(15.9), 2204.1(5)
^{214}Po	163.69 μs	7686.9(99.99)	-	797.9(0.0104)
^{210}Tl	1.3 min	-	4386.3(20)	298.1(79), 797.9(98.96), 860(6.9) 1068(12), 1110(6.9), 1208(17) 1314(21), 2008(6.9) 2358(8), 2428(9)
^{210}Pb	22.3 años	$3720(2 \times 10^{-6})$	16.96(84), 63.5(16)	10.8(9.2), 13.1(10.4) 43.5(4.1)
^{210}Bi	5.013 días	4648.3(60) 4686.7(40)	1162.7(100)	$266.2(4 \times 10^{-5})$ $305.3(6 \times 10^{-5})$
^{210}Po	138.38 días	5304.4(100)	-	80.13(0.0011)
^{206}Tl	4.20 min	-	1533.2(99.9)	-
^{206}Pb	estable	-	-	-

Tabla 2: Modos de desintegración de los radionucleidos de la cadena de desintegración del ^{235}U y energía de la radiación generada en keV. Entre paréntesis, la fracción de ramificación, en %. En el caso de partículas β , se indica la energía máxima

Radionucleido	Período	α	β	γ
^{235}U	7.037×10^8 años	4364(11) 4395(55) 4578(9.2)	-	12.95(22), 16.12(15), 19.2(2.6) 89.96(3.4), 93.4(5.5), 105.36(1.98) 109.18(1.5), 143.79(10.5), 163.38(4.7) 185.74(53), 202.14(1.0), 205.33(4.7)
^{231}Th	1.0633 horas	-	142.2(2.7), 206(12.8), 287.2(12), 288.1(37), 305.3(35)	11.37(3), 13.27(49), 16.56(37) 19.81(7.4), 25.64(14.6), 84.20(6.6)
^{231}Pa	3.276×10^4 años	4950.5(22.8) 5013.1(25.4) 5029.2(20) 5058.7(11)	-	10.87(1.2), 12.64(49), 15.66(37) 18.61(5.9), 27.4(9.3), 283.67(1.6) 300.1(2.4), 302.67(1.7), 330.07(1.3)
^{227}Ac	21.77 años	4938.1(0.52) 4950.7(0.65)	20.3(0.14), 35.5(0.49), 44.8(0.76)	12.95(0.12), 16.07(0.15), 19.31(0.04) 69.83(0.017), 99.7(0.032), 16.0(0.019)
^{227}Th	18.718 días	5709.7(8.2) 5714.2(4.9) 5757.1(20.3) 5977.9(23.4) 6038.2(24.5)	-	12.33(17), 15.22(21) 17.99(4.8), 50.14(8.5) 79.72(2.1), 88.47(3.1) 325.97(11.2), 256.24(6.7) 299.97(2.1), 329.84(2.73)
^{223}Fr	21.8 minutos	5340(0.006)	914.3(10), 1069.4(16) 1099(67)	12.33(16), 15.22(19) 50.14(33), 79.72(8.9) 85.4(2.4), 88.47(4) 234.8(3.7)
^{223}Ra	11.43 días	5606.9(24.2) 5716.4(52.5) 5747.2(9.5)	-	11.71(10.2), 14.3(9.8), 16.9(1.9) 81.07(15.2), 83.79(25.2), 94.68(8.9) 97.9(2.8), 269.4(13.6), 323.9(3.9) 338.3(2.8), 444.9(1.3)
^{219}Rn	3.96 segundos	6425(7.5) 6553.1(12.2) 6819.3(80.9)	-	271.13(9.9), 401.7(6.64)
^{219}At	54 segundos	6275(7.5)	1700(3)	
^{215}Bi	7.4 minutos	-	2250	
^{215}Po	1.78 ms	7386.4(100)	721(0.00023)	438.8(0.04)
^{211}Pb	36.1 minutos	-	541(6.3), 968.1(1.5), 1373(91.3)	404.9(3.8), 427(11.7), 831.9(3.8)
^{215}At	100 μs	8023(99.95)	-	404.86(0.045)
^{211}Bi	2.14 minutos	6279(15.96) 6623(83.77)	579(0.276)	72.87(12.8)
^{211}Po	516 ms	7450.6(98.92)	-	569.15(0.53), 897.23(0.52)
^{207}Tl	4.77 minutos	-	1423(99.73)	897.23(0.24)
^{207}Pb	estable	-	-	-

Tabla 3: Modos de desintegración de los radionucleidos de la cadena de desintegración del ^{232}Th y energía de la radiación generada en keV. Entre paréntesis, la fracción de ramificación, en %. En el caso de partículas β , se indica la energía máxima

Radionucleido	Período	α	β	γ
^{232}Th	1.405×10^{10} años	3952(23) 4010(77)	-	-
^{228}Ra	5.75 años	-	14.9(40), 39.23(60)	12.76(19), 13.5(100), 15.15(10), 18.8(13)
^{228}Ac	6.13 horas	4270	481.0(4.2), 595.5(8.1) 958.6(3.5), 973.5(5.6) 1004.1(5.8), 1104.5(3.0) 1730.1(11.6), 2069.2(10)	12.95(15), 16.15(20), 338.4(12), 911.16(29), 968.97(17.4)
^{228}Th	1.913 años	5340(26.7) 5432(72.7)	-	12.33(3.1), 15.23(4.7), 94.26(1.2), 215.75(9.3)
^{224}Ra	3.66 días	5449.1(4.9) 5685.5(95.1)	-	240.76(3.9)
^{220}Rn	55.6 segundos	6288.29(99.93)	-	549.7(0.07)
^{216}Po	0.150 segundos	6788.5(99.998)	-	804.9(0.0018)
^{212}Pb	10.64 horas	-	158.4(5.2), 335.1(82.5) 573.7(12.3)	10.83(6.6), 13.1(6.0), 74.8(10.5), 77.2(17.7), 87.2(6.3), 238.58(43.6), 300.03(3.3)
^{212}Bi	60.55 minutos	6051(25.23) 6090.1(9.63)	1526.7(4.4), 2254(55.5)	10.26(3.0), 12.8(3.5), 39.85(1.1), 727.25(6.7), 785.51(1.1), 1620.66(1.5)
^{212}Po	298 ns	8784.4		
^{208}Tl	3.053 minutos	-	1292.5(24.5), 1525.8(21.3) 1803.2(48.7)	74.97(3.60), 277.28(6.8), 510.61(21.6), 583.02(86), 860.3(12.0), 2614.35(99.79)
^{208}Pb	estable	-	-	-

2.2.3 Aerosoles radiactivos de elementos estables

Los períodos de desintegración de los principales radionucleidos naturales sin descendientes radiactivos son comparables a la edad de la tierra, lo que explica su presencia actual en la corteza terrestre. En todos los casos, el nucleido descendiente tras la desintegración, resulta ser estable, razón que explica que estos radionucleidos no formen series radiactivas. Algunos de estos elementos son: ^{40}K , ^{50}V , ^{87}Rb , ^{115}In , ^{138}La , ^{144}Nd , ^{147}Sm , ^{152}Gd , ^{174}Hf , ^{176}Lu , ^{187}Re , ^{190}Pt , ^{192}Pt y ^{204}Pb . De todos ellos, el ^{40}K es el que presenta una mayor relevancia como aerosol radiactivo, ya que se encuentra en la mayor parte de suelos y puede ser fácilmente transportado por material resuspendido.

En la figura 19 puede observarse la evolución del ^{40}K a lo largo del año 1999 en Braunschweig (Alemania). Como se puede ver, existen picos visibles, correspondientes a los fuegos artificiales de fin de año y episodios importantes de resuspensión. También hay episodios con altos niveles de ^{40}K debido a actividades humanas que provocan que se remueva la tierra para la agricultura y por tanto un aumento de la resuspensión, tales como cosecha de grano, acondicionamiento de la tierra, o plantación de semillas. El propio abono aportado a la tierra para la cosecha puede influir en la concentración de ^{40}K en el aire dado que el potasio es un importante nutriente para el crecimiento de las plantas.

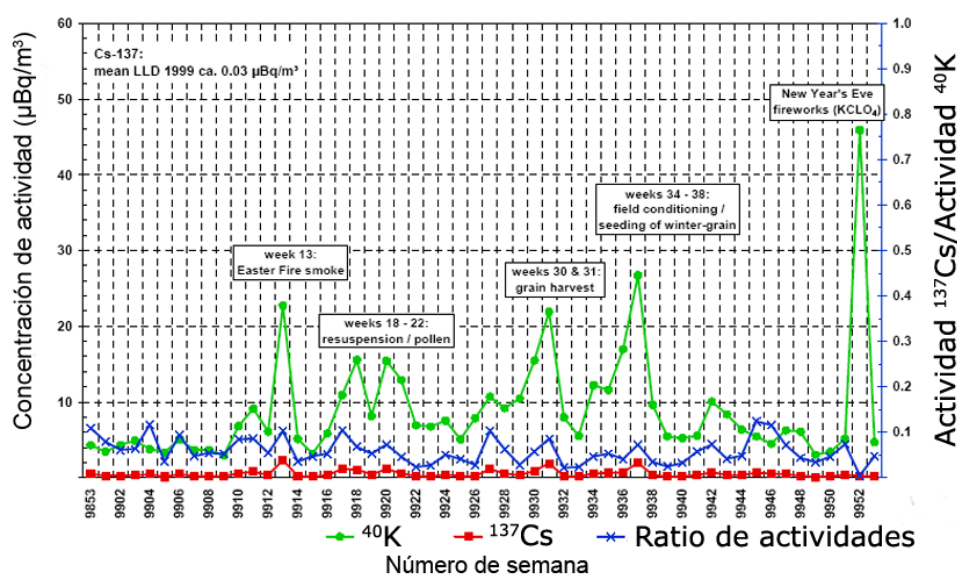


Figura 19: Concentración media mensual de ^{40}K y ^{137}Cs en Braunschweig (Alemania) y su ratio de actividades $A(^{40}\text{K})/A(^{137}\text{Cs})$. Medido en Braunschweig en 1999 (Wershofen and Arnold, 2005)

2.3 Aerosoles radiactivos artificiales

Se considera radiactividad artificial la de los isótopos que han sido producidos de manera artificial por la actividad humana, mediante el bombardeo de isótopos naturales con partículas subatómicas,

rayos gamma o rayos x. Durante las últimas décadas el hombre ha creado artificialmente alrededor de mil radionucleidos, desarrollando técnicas para el uso de la energía del núcleo atómico con diferentes finalidades, como por ejemplo la medicina, armas o la producción de energía. No obstante, la mayoría de la población recibe una cantidad de radiación relativamente pequeña (entre un 20 y un 30%, la mayor parte debido a usos médicos) debida a fuentes artificiales frente a las recibidas por causa de las fuentes naturales, tal y como se observa en la figura 3. Existe otra serie radiactiva, la del ^{297}Np , que debería haberse extinguido, pero las pruebas nucleares realizadas han liberado estos núcleos y por lo tanto esta cadena radiactiva ha vuelto a aparecer. La radiación artificial presente en el medio ambiente es debida principalmente a las pruebas nucleares realizadas durante los últimos cuarenta años, así como a la producción energética nuclear.

Estos radionucleidos artificiales llegan a formar parte de los aerosoles radiactivos pudiendo llegar a ser detectados en laboratorios de análisis de radiactividad, redes de estaciones de vigilancia radiológica, etc. Algunos de los productos radiactivos de las pruebas nucleares que se realizan en la atmósfera se depositan en lugares próximos al de la explosión, pero otros permanecen en la troposfera y son transportados por el viento adheridos a los aerosoles, pudiendo caer posteriormente sobre la superficie de manera gradual, ya sea mediante deposición seca o húmeda. Sin embargo, la mayor parte de ellos llegan a la estratosfera donde permanecen durante muchos meses y desde donde descienden como consecuencia de los intercambios de masas de aire entre la estratosfera y la troposfera para esparcirse por toda la tierra al ser depositados mediante la lluvia o la nieve o bien mediante deposición seca.

El ^{137}Cs , con un período de semidesintegración de 30 años, es el que presenta una mayor relevancia metrológica como aerosol radiactivo artificial. El 26 de abril de 1986 el reactor número 4 de la central de nuclear de Chernobyl explotó. Algunos de los isótopos radiactivos liberados a la atmósfera fueron detectados por diferentes estaciones radiológicas y grupos de investigación en Europa. Antes del accidente de Chernobyl, el ^{137}Cs se encontraba principalmente en la estratosfera debido a las pruebas nucleares. El último país que llevó a cabo una explosión nuclear atmosférica fue Francia durante el año 1974. Como consecuencia, esta fuente de radionucleidos a la atmósfera finalizó. Por este motivo, en la figura 20 se puede observar la disminución de la actividad del ^{137}Cs antes del accidente de Chernobyl.

A partir del accidente, una gran parte del ^{137}Cs liberado se depositó en distintas regiones del suelo europeo, cambiando su ciclo evolutivo. Aunque parte del ^{137}Cs procedente de Chernobyl se depositó en Europa, la deposición en Barcelona fue baja comparada con otras ciudades en Europa (figura 21). Diversas medidas tomadas en diferentes puntos de Barcelona y sus alrededores durante el año 1988, mostraron una baja deposición de ^{137}Cs debido a Chernobyl, de valores entre 30 y 2200 Bq/m^2 (Llauradó et al., 1994)

En el trabajo llevado a cabo por F. Hernández et al. (2005), se muestra que en las Islas Canarias tanto la concentración de ^{137}Cs como de ^{40}K aumenta con la intrusión de calima procedente de África. Las intrusiones de polvo sahariano, caracterizadas por una alta concentración de partículas de PM_{10} , son frecuentes en las Islas Canarias dada su proximidad geográfica. En dicho trabajo se aprecia una relación entre los episodios de detección de ^{137}Cs y ^{40}K . Esto puede ser indicador de que la resuspensión posee un importante papel en la detección de ^{137}Cs .

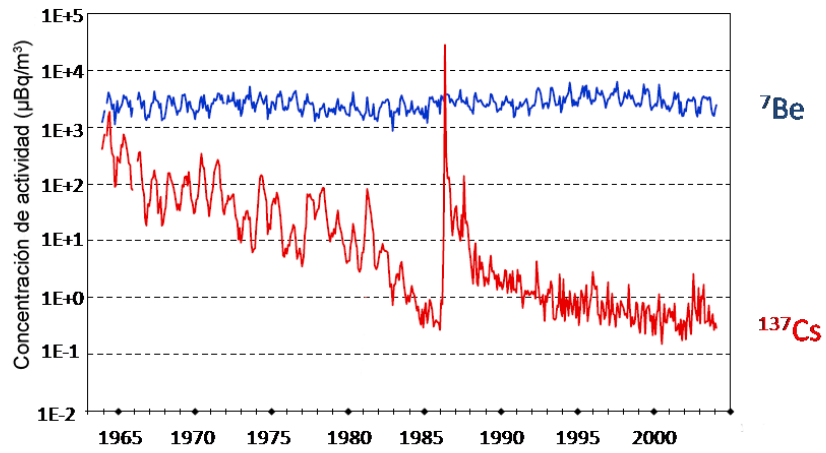


Figura 20: Concentración de actividad mensual promedio de ^{137}Cs y ^7Be medido en Braunschweig (Alemania) entre 1963 y 2003 (Herbert Wershofen and Dirk Arnold, 2005)

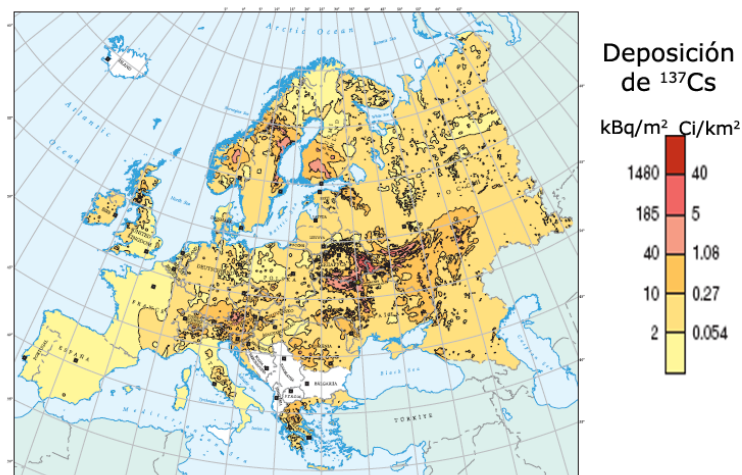


Figura 21: Mapa de deposición de ^{137}Cs en suelo europeo como consecuencia del accidente de Chernobyl (IAEA, 2006)

Algunos de los aerosoles radiactivos artificiales más relevantes emitidos a la atmósfera en caso de accidente nuclear son ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{95}Zr , ^{103}Ru , ^{106}Ru , ^{131}I , ^{132}Te , ^{137}Cs , ^{140}Ba , ^{144}Ce (R.H. Clarke and H.F. Macdonald, 1978). En lo referente a las emisiones rutinarias emitidas por una central a la atmósfera, en la tabla 4 se muestra las actividades descargadas por efluentes gaseosos, desglosadas por isótopos entre los años 1998 y 2003, en la central nuclear de Vandellós II (Tarragona). Estos datos se han obtenido de la colección de informes técnicos publicados por el CSN. El isótopo liberado con una mayor actividad es el ^{133}Xe , seguido del ^3H .

Tabla 4: Actividades vertidas por isótopo en efluentes gaseosos (Bq/año) en la central nuclear de Vandellós II (Tarragona) (CSN, 2010)

	1998	1999	2000	2001	2002	2003
^{144}Ce	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	4.97E+05	0.00E+00	0.00E+00
^{58}Co	2.19E+04	3.18E+07	2.99E+07	1.34E+06	2.10E+07	4.75E+07
^{60}Co	8.89E+04	1.02E+07	1.22E+06	2.45E+05	1.32E+06	6.03E+06
^{51}Cr	0.00E+00	6.78E+06	8.64E+06	0.00E+00	3.07E+06	7.40E+06
^{134}Cs	0.00E+00	0.00E+00	3.49E+04	0.00E+00	5.80E+04	2.21E+06
^{136}Cs	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	3.96E+05
^{137}Cs	0.00E+00	0.00E+00	1.01E+05	0.00E+00	9.98E+04	1.47E+06
^{59}Fe	0.00E+00	2.03E+05	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	5.30E+05
^3H	5.16E+11	2.49E+11	3.54E+11	2.73E+11	2.54E+11	1.98E+11
^{131}I	1.99E+06	1.22E+08	2.44E+08	1.23E+07	4.42E+07	3.74E+08
^{133}I	2.48E+06	4.09E+07	3.53E+07	5.46E+06	9.37E+06	1.08E+08
^{54}Mn	0.00E+00	9.45E+05	3.76E+05	0.00E+00	4.20E+05	2.32E+06
^{99}Mo	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	3.29E+05
^{95}Nb	1.62E+04	1.23E+06	1.27E+06	4.92E+05	9.09E+05	3.51E+05
^{133}Xe	1.15E+10	8.67E+11	1.54E+13	2.62E+10	1.44E+12	1.78E+12
^{135}Xe	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	1.43E+11	0.00E+00	0.00E+00
^{95}Zr	0.00E+00	6.32E+05	8.55E+05	0.00E+00	3.37E+05	0.00E+00

2.4 Aerosoles TENORM

Los materiales denominados Technologically-Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material (TENORM) se originan como consecuencia del incremento en la concentración de radiactividad natural debido a la aplicación de tecnología industrial. Así, el fondo radiactivo medioambiental debido a los aerosoles naturales puede aumentar como resultado de los procesos industriales relacionados con los materiales TENORM. La mayor parte de radionucleidos TENORM se encuentran en las cadenas de desintegración del ^{238}U y del ^{232}Th . El ^{222}Rn y el ^{220}Rn son los principales radionucleidos TENORM ambientales. El ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Po , ^{232}Th , ^{210}Pb , ^{232}Th y ^{228}Ra son otros ejemplos de isótopos TENORM significativos. Algunas de las industrias generadoras de TENORM son la minería, tratamiento y purificación de aguas, tratamiento de papel, gas, petróleo y cementeras (IAEA, 2004). Los niveles de radiación de referencia de estos radionucleidos se encuentran detallados en la publicación "Radiation Protection, 122, part I" de la Comisión Europea (EC, 2001). La producción de fertilizantes puede suponer también la emisión de una dosis extra de isótopos naturales al exterior (Bolívar, 1995).

2.5 Estudios previos de los aerosoles radiactivos en la ciudad de Barcelona

2.5.1 Introducción

Durante los últimos años se han realizado estudios sobre los aerosoles radiactivos en la ciudad de Barcelona. Entre ellos cabe destacar los llevados a cabo en el INTE, que han tenido como consecuencia la presentación de algunas tesis doctorales y publicaciones. En este capítulo se pretende resumir los distintos trabajos realizados como fuente de referencia en el desarrollo de la tesis. Con el objetivo de situar el lugar donde se van a realizar los estudios de los aerosoles radiactivos, se presentará en el apartado 2.5.2 las características topográficas y geográficas de Barcelona, y en el apartado 2.5.3 sus características climatológicas.

2.5.2 Características de la topografía y geografía de la ciudad de Barcelona

El relieve del término municipal de Barcelona pertenece principalmente a tres unidades: la sierra litoral, la llanura de la ciudad de Barcelona y los deltas de los ríos Besòs y Llobregat. En la figura 22 puede observarse una vista aérea de la ciudad y sus alrededores donde se pueden apreciar las ubicaciones de la sierra y los deltas.



Figura 22: Vista aérea de la ciudad de Barcelona. El punto rojo indica la localización de las estaciones radiológicas del INTE

El fragmento de la sierra litoral comprende básicamente el parque de la sierra de Collserola, de formas redondas, que se levanta repentinamente sobre la llanura y se mantiene a una altitud de 300 a 500 metros, con la culminación del Tibidabo (512m). Su base es de constitución granítica con una fuerte descomposición debido a las condiciones de meteorización del clima mediterráneo. Por encima hay depositada una capa de distintos tipos de rocas de origen sedimentario de diferentes períodos de la historia de composición metamórfica, calcárea así como arenas, greses y conglomerados. Esta sierra queda limitada por una falla de orientación NE-SW que la separa de una serie de sierras de menor altura como son los picos de Monterols (121m), el Puget (181m), can Muntaner (189m), el Falcó (249m), el Carmel (267m), el turó de la Rovira o montaña Pelada (261m) i el turó de la Peira (133m), formados por los mismos materiales de la capa superior de la sierra de Collserola y edificados en casi su totalidad. Entre estas dos alineaciones, a lo largo de la falla que las separa, se abre el corredor de Horta a Sarrià, excavado en el granito descompuesto y actualmente aprovechado por el paso de la Ronda de Dalt. El "coll dels Penitents", o de los Quatre Camins (170m), que es el punto más alto de este corredor, separa las pequeñas cuencas de Horta y de Sarrià.

El piemonte forma un rellano superior de la llanura de Barcelona separado del rellano inferior por una escarpa de unos 15m de altura. El rellano superior está constituido por un basamento de arcillas amarillas pliocénicas, que contienen niveles de arena en los cuales se incluyen acuíferos. Sobre ese suelo pliocénico hay superpuestos unos depósitos cíclicos formados por arcillas rojas a la base, seguidas de limos amarillos y de una costra calcárea en la parte superior, que corresponden a diferentes intervalos de las oscilaciones climáticas del Cuaternario. El límite de esta llanura, actualmente identificable, constituía la línea de la costa al inicio de los tiempos históricos; a la ciudad antigua esta escarpa pasaba por Plaza de Cataluña actual y seguía hacia el vertiente septentrional de Montjuïc. El rellano inferior se inicia al pie de esta escarpa, y lo forman materiales recientes depositados a las tierras ganadas al mar desde la época romana o de poco tiempo antes. Por encima se situaron las villas nuevas de la Barcelona medieval. Dos pequeños montes sobresalen esta llanura: uno de poca importancia topográfica es el antiguo monte Taber (15m), donde se ubicó la ciudad primitiva; el otro, que sobresale mucho más en el relieve, es la montaña de Montjuïc (173m), formado por arcillas y greses miocénicos con los que se construyó la mayor parte de los edificios monumentales de Barcelona, al menos hasta 1955, y que se levanta suavemente sobre la llanura, mientras que, cortado por una falla, cae repentinamente sobre el mar, formando un risco de más de 150m.

Al noreste y al suroeste, la llanura inferior de Barcelona sigue sin interrupción por las llanuras deltaicas de los ríos Besòs y Llobregat, respectivamente. El delta del Besòs es una llanura de unos 17 km². Al fin de la década de los noventa, el curso del Besòs en su tramo final ha sido remodelado y el delta ha sido ensanchado con una pequeña península artificial. El delta del Llobregat forma una llanura de más de 90 km² que queda fuera del término municipal de Barcelona, pero que constituye un área de expansión reciente de barrios residenciales, y de centros de servicios del puerto y de la ciudad. La urbanización moderna desborda la llanura y se expande por los cursos de los dos ríos pasando la sierra Litoral, hacia la llanuras de la comarca del Valles Occidental.

2.5.3 Características climatológicas de la ciudad de Barcelona

El conocimiento de la climatología en la región de estudio es un parámetro importante para caracterizar el comportamiento de los aerosoles radiactivos. Barcelona tiene un clima mediterráneo

húmedo, con lluvias concentradas en muy pocos días de precipitación muy intensa, por el fenómeno conocido como gota fría, que puede llegar a dejar precipitaciones de 80 o 100 litros por metro cuadrado en apenas un par de horas. Las temperaturas son cálidas en verano y suaves en invierno, con una escasa oscilación térmica diaria. La máxima temperatura registrada en el centro de la ciudad fue de 39,3° C, el 27 de agosto de 2010. La temperatura mínima registrada es de -10°C en el Observatorio Fabra, el 11 de febrero de 1956. Las temperaturas de la ciudad siempre se mantienen unos grados por encima de la temperatura media de otras zonas colindantes no tan densamente urbanizadas, debido al efecto que incrementa la temperatura de las ciudades por el gran consumo de energía, y por el calor reverberado por el asfalto y los tejados, que actúan como captadores solares. Generalmente hay dos ciclos de frío al año (antes del fin de año y durante febrero), que corresponden a la coincidencia del anticiclón continental con un núcleo de bajas presiones situado sobre el Mediterraneo occidental. Enero tiene temperaturas relativamente altas y suele ser soleado. En Barcelona nieva una vez cada cuatro o cinco años. Hay un régimen regular de vientos en el cual se predominan los vientos procedentes del suroeste prácticamente durante todo el año y sobre todo en verano. Existen también vientos esporádicos de levante y de poniente, que son los que provocan los grandes temporales. En la gráfica 23 se presenta el número de casos de viento medidos según su procedencia con los datos obtenidos mediante la veleta existente en la estación radiometeorológica del Campus Nord durante el período comprendido entre el 2005 y 2009. Los vientos predominantes tal y como se puede observar son los que provienen del sur oeste. Un total del 44,9% de los vientos provienen de direcciones entre los 213.75 y 281.25 grados. Los vientos procedentes del norte parecen los menos usuales, siendo un 20.2% los vientos procedentes de direcciones comprendidas entre 303.75 y 56.25 grados. Por último, los vientos procedentes de este y sureste (entre 78.75 y 191.25 grados), representan un 34.9% del total.

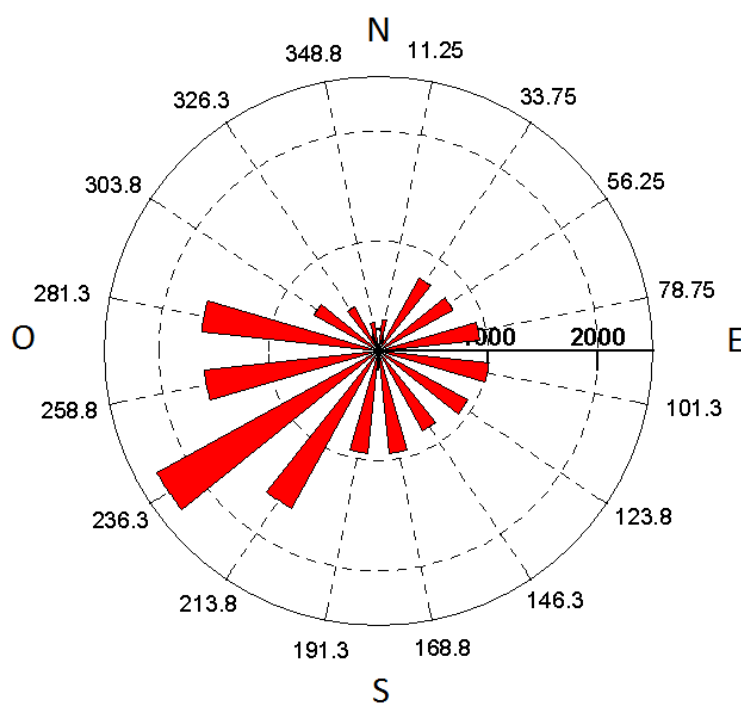


Figura 23: Procedencia de vientos en Barcelona durante el período comprendido entre 2005 y 2009

La presión media anual es de 762.5 mm, con variaciones mensuales muy pequeñas. La oscilación diaria media es de unos 4 mm. La presión máxima es de 780 mm, y la mínima de 728 mm, ambas en invierno. Las precipitaciones medias anuales, entre 1960 y 1990, fueron de 667 mm, con un máximo muy acusado de septiembre a octubre y un máximo secundario de marzo a mayo. Son características las precipitaciones de gran intensidad momentánea. La humedad relativa es del 70%, muy constante a lo largo del año, pero con importantes diversificaciones a causa de la topografía. La presencia en las capas bajas de la atmósfera de múltiples núcleos condensadores procedentes de las emisiones de gases, coches y calefacciones, provoca a las primeras horas de la mañana la condensación de vapor de agua de la atmósfera entre 170 y 200 metros de altitud.

2.5.4 Aerosoles radiactivos de vida larga

En el INTE se han realizado diversos estudios con el objetivo de caracterizar el comportamiento de los aerosoles radiactivos de vida larga. A continuación se resumen algunos de los resultados obtenidos. En la figura 24 se pueden observar resultados de concentración de actividad obtenidos en el aire en el Campus Sud, entre 2001 y 2005 para los siguientes radionucleidos emisores gamma: ^{137}Cs , ^7Be , ^{40}K y ^{210}Pb (Vallés et al., 2009), en un estudio realizado por el LARA previamente al desarrollado en el presente trabajo. Los valores de los radionucleidos señalan una tendencia bastante estable con el paso de los años. Tan solo en el caso del ^{137}Cs se advierte una ligera tendencia descendente como consecuencia de su desintegración desde el accidente de Chernobyl.

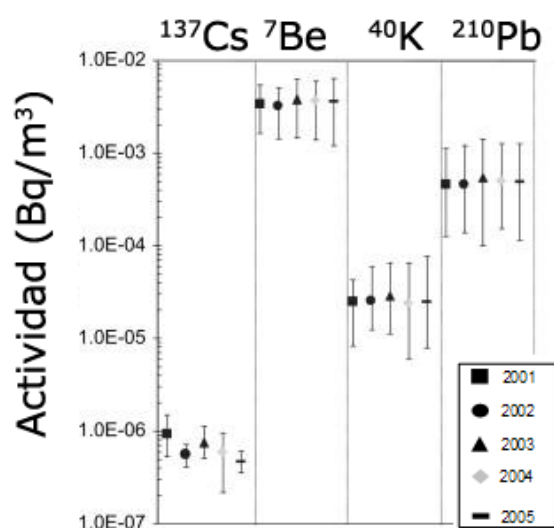


Figura 24: Concentración de actividad promediada anualmente para diferentes radioisotopos entre 2001 y 2005 (Vallés et al, 2009)

La figura 25 muestra la distribución de actividad mensual de ^7Be , ^{210}Pb , ^{40}K y ^{137}Cs , calculada como promedio de 5 años (2001-2005). Las variaciones temporales del ^7Be y ^{210}Pb presentan algunos

puntos en común, con valores máximos en el verano y mínimos en el invierno. Sin embargo las actividades para ^{40}K y ^{137}Cs no siguen una tendencia estacional clara. Esto puede tener relación con el hecho de que mientras que el ^7Be y ^{210}Pb tienen origen atmosférico, el ^{40}K y ^{137}Cs se encuentran en el suelo y pasan al medio aéreo mediante resuspensión (Vallés et al, 2009), de manera local en el caso del ^{40}K y desde fuentes lejanas en el caso del ^{137}Cs , mostrando por tanto valores que dependen de factores puntuales tales como la actividad de los radionucleidos depositados en el suelo.

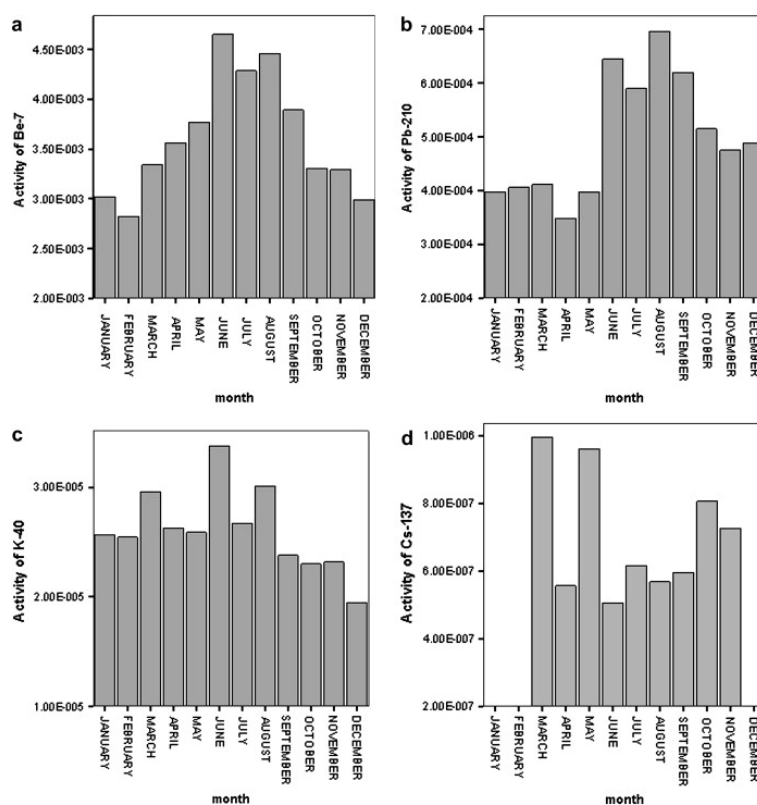


Figura 25: Concentraciones de actividad de ^7Be (a), ^{210}Pb (b), ^{40}K (c) y ^{137}Cs (d) promediadas mensualmente entre 2001 y 2005 (Vallés et al, 2009)

2.5.5 Aerosoles radiactivos de vida corta. Descendientes de radón

En el INTE se han desarrollado trabajos relacionados con la evolución temporal de los descendientes de vida corta del radón. A continuación se exponen los resultados obtenidos, con el objetivo de caracterizar su evolución temporal.

En cuanto a la variación horaria de la concentración de los descendientes de radón, existe un máximo alrededor de las 9:00 y las 10:00 horas. El motivo es que a partir de dicha hora la capa de mezcla comienza a elevarse, de manera que hasta ese preciso instante el radón se ha ido acumulando desde las 20 horas, tal y como se observa en la figura 26. Durante la noche, en general, al aparecer inversiones térmicas, el radón exhalado por el terreno no tiene capacidad para diluirse y se acumula en las capas bajas de la atmósfera. Cuando sale el sol, se rompe la capa de inversión, y entonces el

radón atmosférico tiene una mayor capacidad para diluirse en la atmósfera. Con el incremento de la radiación solar durante las horas del día, aparecen corrientes ascendentes de aire que favorecen la dilución del radón en la atmósfera. Por ese motivo, durante los meses de mayor insolación, la concentración de radón sufre una gran reducción durante las horas del día, y consecuentemente se observa una acusada oscilación de la concentración del radón entre el día y la noche (Cortés, 2002).

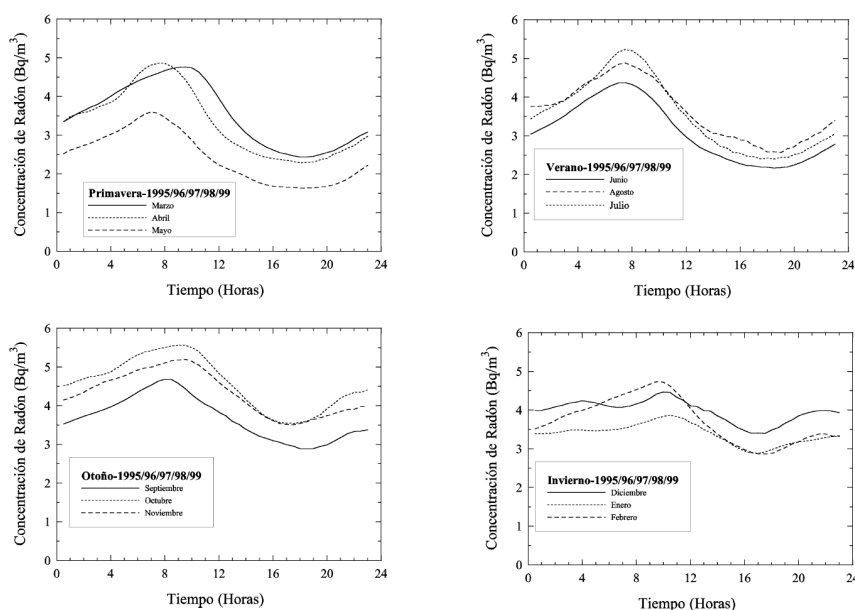


Figura 26: Evolución horaria de la concentración de radón para las cuatro estaciones en la estación del Campus Nord, entre los años 1995 y 1999 (Cortés, 2002)

Con la finalidad de encontrar correlaciones entre la concentración de radón y la dirección del viento, en el trabajo de Cortés (2002), se compararon los valores de dichas variables obtenidos en la estación del Campus Nord entre 1995 y 1999. En la figura 27 se representa en un mismo gráfico la dirección y la velocidad del viento junto con la concentración de radón registrados. Para velocidades de viento superiores a 2 m/s, se observa que la concentración de radón más baja aparece cuando el viento proviene del sector comprendido entre las direcciones ENE y SW. Este sector corresponde al viento que proviene del mar. Para el resto de direcciones (viento procedente de tierra) la concentración de radón es más elevada. Cuando el viento proviene del mar la concentración de radón es menor ya que las exhalaciones de radón en el mar son inapreciables si se comparan con las exhalaciones del suelo.

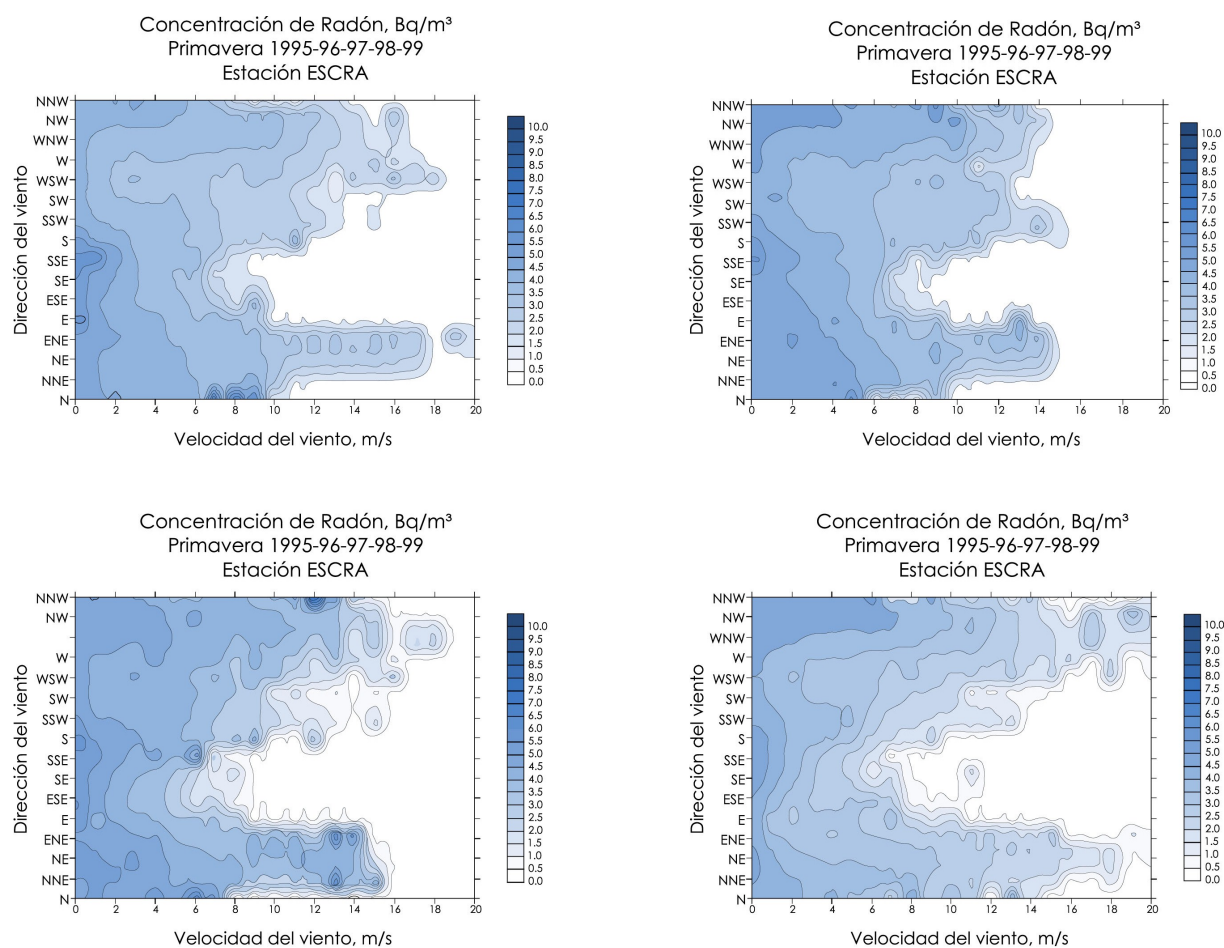


Figura 27: Concentración de radón en función de la velocidad y dirección del viento en la estación del Campus Nord durante las cuatro estaciones entre los años 1995 y 1999 (Cortés, 2002)

Durante los episodios de lluvia se ha observado un incremento de la tasa de dosis debido a la existencia de descendientes de radón en el agua de lluvia (figura 28).

Tal y como se puede observar en la figura 29 las concentraciones de ^{214}Pb y ^{214}Bi no se encuentran en equilibrio (Cortès et al, 2001). Este desequilibrio entre la actividad de los dos descendientes de radón emisores de radiación gamma se debe a que una vez se ha formado la gota de agua y con los descendientes de radón en equilibrio, la desintegración radiactiva del ^{214}Pb va generando ^{214}Bi . En el apéndice A.5 se observa gráficamente la evolución de estos dos radioisótopos. El tiempo que tarda la gota de agua en llegar al suelo desde que se forma la nube será la responsable del grado de desequilibrio. Por otro lado, la variación de actividad en el agua de lluvia dependiendo del episodio puede ser explicado si consideramos el camino seguido por las nubes hasta llegar al punto en el que recogemos el agua. Cuando la tormenta viene desde el mar, las concentraciones de descendientes de radón en la nube es menor que cuando la nube procede de una zona con suelo.

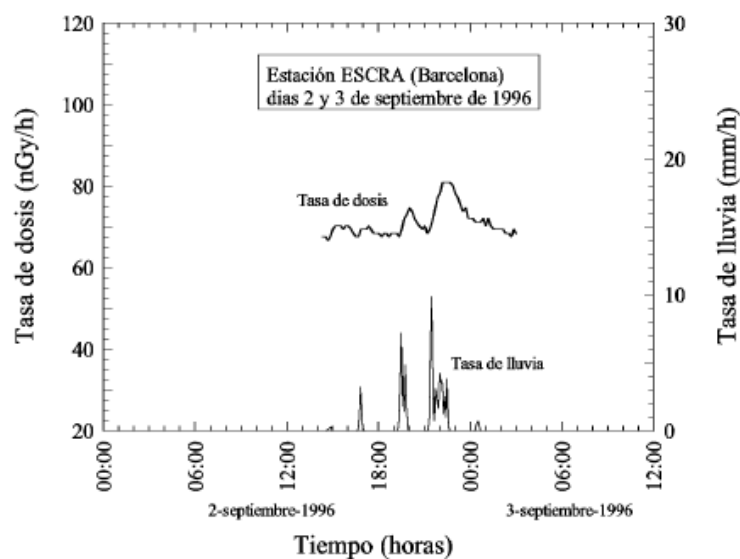


Figura 28: Tasa de dosis debida a los descendientes del radón durante un episodio de lluvia observado en la estación radiometeorológica del Campus Nord de Barcelona (Cortés, 2002)

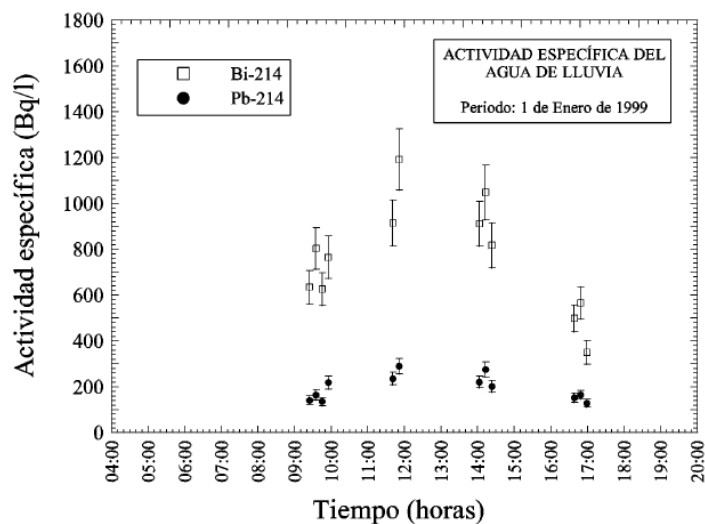


Figura 29: Actividad específica de ^{214}Pb y ^{214}Bi en el agua de lluvia registrada durante el día 1 de enero del año 1999 en la estación radiometeorológica del Campus Nord (Cortés, 2002)

Parte II

Instrumentación y metodología

3 Instalaciones, equipos y metodología

3.1 Introducción

El método de medida elegido para realizar una evaluación de la radiactividad medioambiental suele seleccionarse en función de las circunstancias y objetivos del estudio que se pretende llevar a cabo. Algunos ejemplos del gran rango de escenarios que se puede considerar van desde áreas con una baja actividad hasta la monitorización de posibles situaciones de emergencia con altas actividades. Para elegir un método óptimo, es fundamental conocer en cada situación tanto la fuente de radiactividad como su mecanismo de dispersión en el medio ambiente. Desde hace ya unos años, los equipos y métodos para la medida de la radiactividad se han ido mejorando con el objetivo de poder disponer de niveles bajos de detección y así estimar con mayor fiabilidad la cuantificación de las fuentes. Estas tecnologías de medida de la radiación continúan evolucionando con mejoras graduales en términos de información de radionucleidos específicos, sistemas de medida, métodos de cálculo y control de calidad, en paralelo con el desarrollo en otros campos como la electrónica y los estudios medioambientales en general. La monitorización del aire es de especial relevancia puesto que la inhalación es una importante vía de exposición a la radiación. Además, el medio aéreo supone un rápido mecanismo de transporte y de deposición de partículas radiactivas, lo cual puede provocar la entrada en la cadena alimenticia. Los sistemas de medida de la radiactividad en el aire pueden clasificarse según diversos criterios como son: sistemas de medida de aerosoles o gases, sistemas de medida mediante recuento total o espectrometría, sistemas de medida en continuo o por toma de muestras, y sistemas que requieren un tratamiento radioquímico previo o que no lo necesitan.

A continuación, se describen de manera más técnica los diferentes equipos utilizados en este trabajo para la caracterización de los aerosoles radiactivos en Barcelona, así como las instalaciones en las que se esta instrumentación se encuentran ubicada. Además, se detalla la metodología utilizada en esta tesis y los métodos para el cálculo de parámetros que caracterizan el comportamiento de los aerosoles radiactivos en Barcelona, en este caso, tiempo de residencia y deposición seca y húmeda.

3.2 Instalaciones

El INTE dispone de instrumentación destinada a la medición de variables meteorológicas y radiológicas en la ciudad de Barcelona. Dichos equipos se encuentran ubicados en dos emplazamientos: la estación radio-meteorológica automática, situada en el Campus Nord de la UPC, que se detalla en el apartado 3.2.1, y la estación de muestreo radiológico situada en el Campus Sud de la UPC, descrita en el apartado 3.2.2. La ubicación de ambas estaciones se puede apreciar en la figura 30, donde puede observarse un plano de los Campus Nord y Campus Sud de Barcelona.

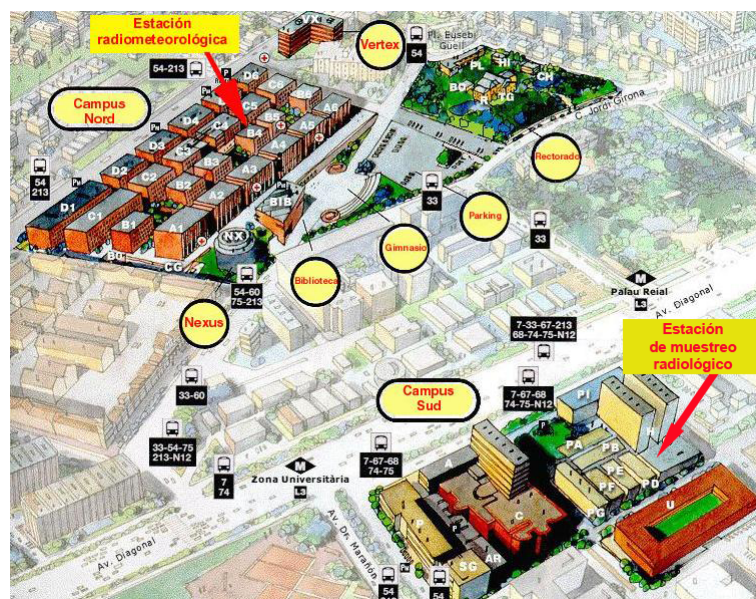


Figura 30: Situación de la estación de muestreo radiológico del Campus Sud y de la estación radiometeorológica del Campus Nord

3.2.1 La estación radio-meteorológica automática del Campus Nord

Aparte de los organismos de carácter público, otras iniciativas puntuales han dedicado y dedican esfuerzos humanos y económicos para la instalación, puesta a punto y explotación de estaciones de vigilancia de la radiación ambiental. Una de estas iniciativas fue llevada a cabo por el INTE. Mediante el empleo de recursos propios y después de un período de diseño y construcción, en el mes de marzo del año 1994 el INTE puso en funcionamiento la estación radio-meteorológica del Campus Nord, destinada a la vigilancia, control y estudio de los campos de radiación ionizante ambiental. La explotación de los datos registrados ha permitido realizar un seguimiento de las condiciones radiológicas y meteorológicas en el Campus Nord de la UPC. Además, el análisis de la información registrada ha contribuido a la caracterización radiológica de la zona donde se encuentra ubicada la estación. Desde la fecha de puesta en funcionamiento de la estación radio-meteorológica, el equipo de investigación de radiactividad ambiental del INTE ha realizado una serie de actividades enfocadas tanto al desarrollo y calibración de sondas y sistemas de medida como a la optimización de la explotación de los datos de las estaciones de la REA del CSN, y del INTE.

La estación de control de la radiación ambiental del Campus Nord, está situada en Barcelona, en el Campus Nord de la UPC (C. Jordi Girona, 1-3). Se encuentra ubicada en el terrado del módulo B4 del Campus Nord de la UPC. Los edificios más cercanos se sitúan a 14 m, no siendo rebasada en altura por ninguno de ellos. El módulo B4 está comunicado con el módulo B5 en todas sus plantas, siendo el terrado común a ambos módulos. El acceso a dicha azotea es a través de las puertas de emergencia del módulo B5. Sus coordenadas UTM (huso 31) son Este 425823.17 m y Norte 4582308.61 m que corresponden a las coordenadas geográficas Longitud $2^{\circ} 6' 46''$ y Latitud $41^{\circ} 23' 17''$, encontrándose a 110 m respecto al nivel del mar. La ubicación de la estación se muestra en la figura 31, donde puede observarse un plano con su situación.

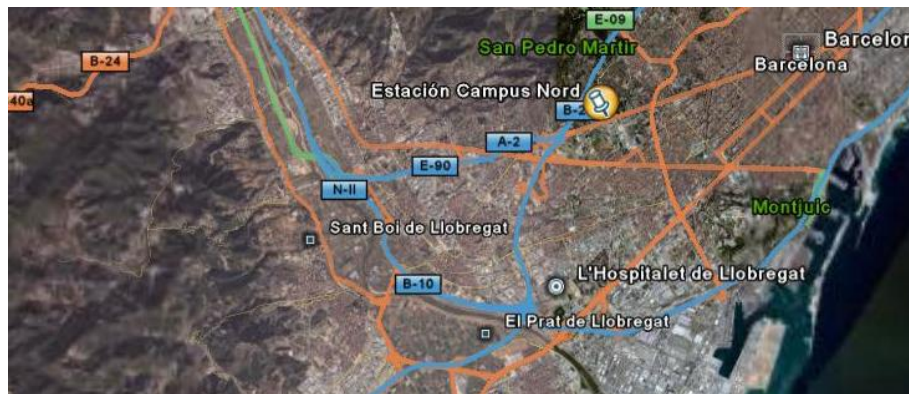


Figura 31: Situación de la estación radiometeorológica del Campus Nord

La estación cuenta con una caseta de mampostería de 6 m de anchura por 6 m de longitud y 3 m de altura. En su interior dispone de dos dependencias con una superficie útil total de 32 m², donde se ubican el sistema de tratamiento de datos y algunos de los sistemas de medida, tal y como se muestra en la figura 32. También dispone de una azotea de 36 m² de superficie a la que se accede mediante una escalera situada en el exterior de la estación.

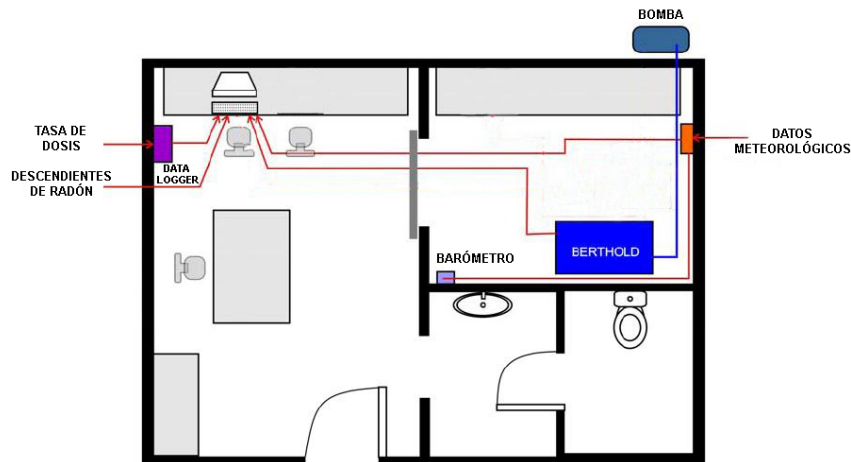


Figura 32: Planta de distribución interior de la caseta de la estación radiometeorológica del Campus Nord

En la azotea se ubican sensores radiológicos y meteorológicos que se encuentran instalados en una torre metálica de acero inoxidable de 3m de altura. Puede verse una imagen de la fachada de la caseta en la figura 33

Los equipos de la estación radiometeorológica que miden variables radiológicas son los siguientes:

- Una cámara de ionización para la medida de tasa de dosis ambiental con un rango de medida de 0 a 100 mR/hr.
- Un equipo monitor de aerosoles radiactivos, para la medida de la concentración de actividad



Figura 33: Fachada principal de la caseta de la estación radiometeorológica del Campus Nord

de descendientes de ^{222}Rn , así como la concentración de partículas alfa y beta de origen artificial. Además, mide la concentración de actividad de emisores gamma mediante un detector de NaI.

En el apartado 3.3.1 se explica con mayor detalle cada uno de estos equipos de medida de la radiactividad.

Los equipos de la estación radiometeorológica que miden variables meteorológicas son los siguientes:

- Un termómetro Lambrecht, modelo 809 LO-100, con un rango de medida de -60°C a 70°C .
- Un higrómetro marca RENSE modelo HT-730-M-LO, con rango de medida de humedad del 5% al 95%.
- Un piranómetro marca Lambrecht, modelo 1610, para la medida de la radiación solar global con rango de medida entre 0 y 1400 W/m^2 .
- Un pluviómetro marca Lambrecht, modelo 15188, con capacidad de hasta 7.5 mm/minuto.
- Un barómetro de marca Lambrecht, modelo 812 B1000, con un rango de medida de presión atmosférica de 945 a 1055 hPa.
- Un sensor de viento ultrasónico marca Vaisala, modelo WS425, que mide la velocidad del viento de 0 a 55.8 m/s y la dirección del viento con una cobertura de 360° .

3.2.2 La estación de muestreo radiológico del Campus Sud

En el terrado de las instalaciones principales del INTE, localizadas en el Campus Sud de la UPC, existen diversos equipos orientados a la vigilancia de la radiactividad ambiental. Dichas instalaciones se encuentran en el módulo C de la Escuela Técnica Superior de Ingeniería Industrial de Barcelona (ETSEIB. Avenida Diagonal, 647.) Sus coordenadas UTM (huso 31) son Este 426082.62

m y Norte 4581750.28 m, que corresponden a las coordenadas geográficas Longitud 2° 6' 57" y Latitud 41° 23' 2", y se encuentra a 79 m respecto al nivel del mar. En la figura 30 puede verse un plano con la ubicación del Campus Sud de Barcelona. El acceso a esta estación de muestreo se realiza a través de las escaleras de acceso al terrado del INTE existentes en la planta 1 del edificio C'. La estación tiene una superficie de 513.72 m², pudiendo verse una imagen de la misma en la figura 34.



Figura 34: Vista general de la estación de muestreo radiológico del Campus Sud

Los equipos destinados a la medida de variables radiológicas en esta instalación son los siguientes:

- Un equipo de alto caudal para recolección de filtros con partículas en la atmósfera de Barcelona.
- Un impactor en cascada destinado a la clasificación por tamaños de las partículas de los aerosoles.
- Un equipo de deposición seca y húmeda destinado a la cuantificación de parámetros relativos a deposición atmosférica de partículas radiactivas.
- Una batea de agua de lluvia utilizada para el muestreo de la deposición atmosférica total.

En el apartado 3.3.2 se explica con mayor detalle cada uno de estos equipos.

3.2.3 El Laboratorio de Análisis de Radiactividad (LARA)

Los análisis de radiactividad de los equipos que se encuentran en la estación de muestreo radiológico se han llevado a cabo en el Laboratorio de Análisis de Radiactividad Ambiental (LARA) del INTE en la UPC. Se trata de un laboratorio acreditado por la Entidad Nacional de Acreditación (ENAC), según la norma ISO17025, para la medida del contenido radiactivo en muestras de agua, suelo y aire. El LARA ha estado desarrollando actividades en el campo de la medida de bajos niveles de radiactividad desde el año 1982. El año 1983 fue considerado "Servicio de Apoyo a la Investigación" por la Dirección General de Universidades del Departamento de Educación de la Generalitat de Catalunya. Colabora con entidades como el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), el Servicio

de Coordinación de Actividades Radiactivas del Departamento de Trabajo, Industria, Comercio y Turismo de la Generalitat, la Dirección General de Salud Pública del Departamento de Sanidad y Seguridad Social de la Generalitat, la Sociedad General de Aguas de Barcelona, el Ayuntamiento de Barcelona, centros universitarios y otras entidades públicas y privadas.

El Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) reconoció el año 1985 la capacidad técnica del LARA para la realización de determinaciones radiológicas relacionadas con el "Plan de Vigilancia Radiológica Ambiental" de las centrales nucleares Ascó y Vandellós. Desde este mismo año, también ha realizado ejercicios de intercomparación con organismos nacionales e internacionales: CSN, Environmental Protection Agency (EPA), International Atomic Energy Agency (IAEA).

En el laboratorio radioquímico se realiza la preparación física de las muestras, la separación química de diferentes radioisótopos y preparación de muestras patrón (figura 35).



Figura 35: Laboratorio radioquímico del INTE

En el laboratorio de bajo fondo del LARA (figura 36) se realizan las medidas de bajas actividades en muestras de suelo, agua y aire. El laboratorio cuenta con un sistema de ventilación forzado que mantiene el laboratorio a una pequeña sobrepresión con el objetivo de disponer de niveles de radón mínimos. El laboratorio cuenta con 4 detectores de espectrometría gamma de alta resolución, 1 detector de bajo fondo de centelleo líquido, 6 detectores de espectrometría alfa de bajo fondo, 6 detectores de SZn y 20 cámaras de ionización de bajo fondo para medida de alfa y beta totales.



Figura 36: Laboratorio de bajo fondo del INTE

3.3 Equipos para la medida de aerosoles radiactivos

Los equipos que tienen como finalidad la medida de variables relacionadas con los aerosoles radiactivos en las estaciones del INTE en Barcelona son los siguientes:

3.3.1 Equipos de la estación radio-meteorológica del Campus Nord

3.3.1.1 Monitor de aerosoles radiactivos en continuo

La estación del Campus Nord dispone de un monitor de aerosoles de la marca Berthold, modelo LB/BAI 9850-D, destinado a la medida de la concentración de los emisores alfa y beta artificiales en la atmósfera, y para la medida de la concentración de los descendientes del ^{222}Rn atmosférico. En la figura 37 se puede apreciar una fotografía del monitor.

El monitor consiste en un detector de partículas alfa y beta, constituido por un centelleador plástico alfa de ZnS de $0,5 \text{ mg/cm}^2$ de espesor másico, y un detector de centelleo beta de polivinilo tolueno (PVT) de 6 mg/cm^2 , que se encuentran situados frente a un filtro de fibra de vidrio. El filtro, de 50 mm de anchura, se desplaza a una velocidad de 10 mm/h y a través de él circula aire exterior con un caudal de unos $7 \text{ m}^3/\text{h}$. El aire se recoge del exterior a una altura de 2 metros por encima de la azotea de la estación, mediante una conducción de PVC de 4 cm de diámetro y 5.5 metros de longitud. Las partículas de aerosoles del aire se depositan en el filtro, y al estar enfrente del detector de centelleo, éste detecta las partículas beta emitidas por los radionucleidos depositados en el filtro, y el recubrimiento de ZnS detecta las partículas alfa. El esquema del sistema de desplazamiento se muestra en la figura 38. Las ecuaciones seguidas por los radionucleidos detectados mediante este equipo se desarrollan en el apéndice A.2.



Figura 37: Fotografía del monitor Berthold

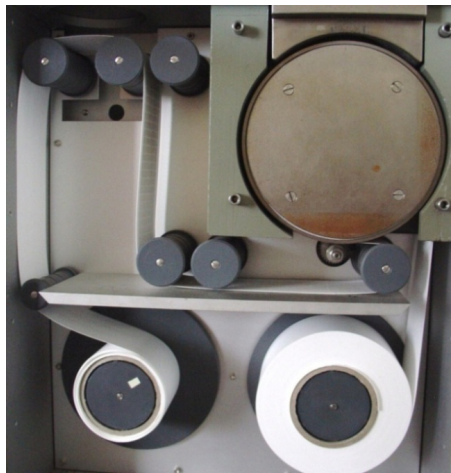


Figura 38: Vista del desplazamiento del filtro del equipo Berthold

Dada la anchura y velocidad de avance del filtro utilizado en el Berthold para realizar las medidas, el detector puede llegar a contabilizar desintegraciones que provienen de radionucleidos depositados en dicho filtro hace 5 horas. Este hecho lleva a considerar la posibilidad de que exista un ligero desfase temporal en la medida de las concentraciones frente al tiempo. El desfase de una hora se puede apreciar en la figura 39. En la figura 40 se muestra el valor corregido, observándose un ajuste casi perfecto. El método seguido para corregir este desfase es la resolución de las ecuaciones 30, 31 y 32 del apéndice A.2 para una concentración de 1 Bq/m^3 en equilibrio ($C_i=1$), con una evolución senoidal de 24 horas e integrando el número de cuentas para medidas de una hora (Vargas et al., 2008).

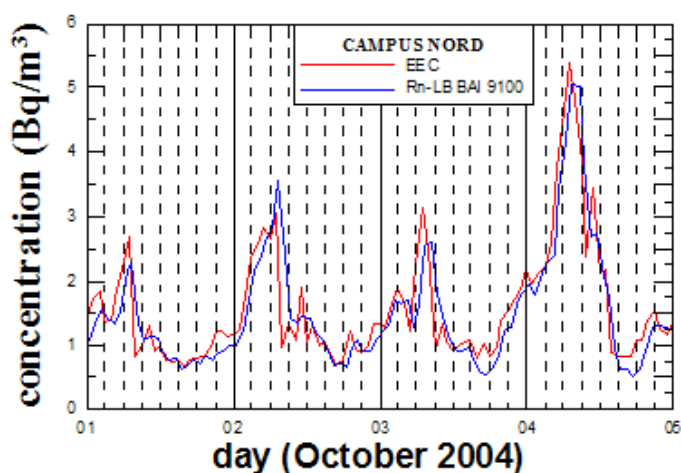


Figura 39: Comparativa entre las concentraciones de descendientes de ^{222}Rn obtenidas por el equipo Berthold y el sistema desarrollado por el INTE

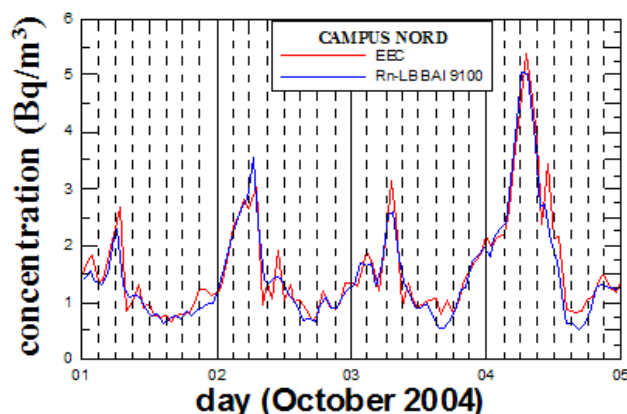


Figura 40: Comparación entre las concentraciones de descendientes obtenidas por el equipo Berthold corregido por un desfase temporal de 1 hora y el sistema desarrollado por el INTE

3.3.1.2 Monitor de tasa de dosis

El monitor de tasa de dosis es una cámara de ionización de la marca Reuter-Stokes, modelo RSS-112. El volumen de detección es esférico con una capacidad de 4.2 litros. El gas de llenado es argón de alta pureza, y se encuentra a una presión de 25 atmósferas. El rango de medida se sitúa entre los 0 y los 100 mR/hr. La temperatura de operación es de entre -25° y 55° C. La sonda se conecta a un módulo de control que se encarga de comunicarse con la sonda y almacenar los datos registrados en una memoria donde se pueden almacenar hasta 128 kbytes de información, que corresponde a seis meses de datos si las medidas se realizan a intervalos de 10 minutos. Los datos almacenados en

la memoria del módulo de control se transfieren a un ordenador personal mediante una conexión RS-232. La sonda Reuter Stokes está situada en la parte superior de la torre meteorológica, a unos 3 metros del suelo de la azotea de la estación del Campus Nord. En la figura 41 se observa una imagen de este equipo.



Figura 41: Monitor de tasa de dosis de la estación radio-meteorológica del Campus Nord

3.3.1.3 Equipo de medida en continuo de la actividad del agua de lluvia

En el año 1997 se inició el diseño de un dispositivo destinado a la medida de la actividad específica en el agua de lluvia de los descendientes de ^{222}Rn y otros radionucleidos emisores de radiación gamma. El principio de funcionamiento consiste en la colección de una muestra de agua de lluvia, la obtención de un espectro de la emisión de la radiación gamma de la muestra, el análisis del espectro obtenido, la identificación de los radionucleidos emisores de radiación gamma, y la obtención de la actividad específica de cada radionucleido identificado en la muestra. Todo este proceso se realiza de forma automática en el mismo lugar donde se recoge la muestra, lo que permite determinar la composición de radionucleidos de vida corta.

En la figura 42 se presenta un diagrama en el que se pueden observar los elementos que componen el equipo SARAC. El principio de funcionamiento consiste en un colector de lluvia que canaliza el agua de lluvia recogida para que esta pase a un recipiente de recuento, destinado a almacenar el agua de lluvia durante el proceso de obtención del espectro. Existe un sistema de espectrometría gamma constituido por un detector portátil de germanio de alta pureza refrigerado por el nitrógeno líquido existente en el interior de un criostato adosado al detector. Los espectros son analizados mediante un analizador multicanal. En el trabajo de tesis realizado por Cortès (2002) existe una descripción más detallada de este equipo. Las ecuaciones propias de los descendientes de vida corta de ^{222}Rn medidos en el equipo SARAC se encuentran descritas en el apéndice A.5

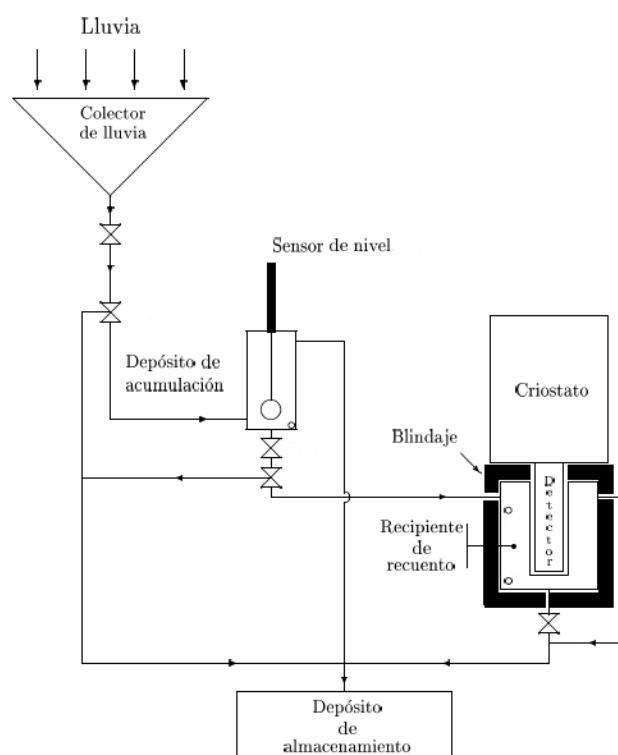


Figura 42: Esquema general del equipo SARAC (Cortès, 2002)

3.3.2 Equipos de la estación de muestreo radiológico del Campus Sud

3.3.2.1 Equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volúmen

El equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volúmen modelo ASS-500 (figura 43), diseñado por el Central Laboratory for Radiological Protection (CLOR) de Varsovia, recoge muestras semanales de partículas de la atmósfera de Barcelona mediante una bomba de aspiración, haciendo pasar aire a través de un filtro de polipropileno G3 de superficie 44×44 cm. Las muestras se recogen en el terrado de las instalaciones que el INTE posee en el Campus Sud para su posterior análisis. El flujo máximo de la bomba de aspiración es de $800 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ y el promedio semanal, normalmente se encuentra en un rango entre 70000 y 100000 m^3 . La masa de partículas recogidas en el filtro se calcula pesando los filtros antes y después de la exposición bajo las mismas condiciones de laboratorio. Después de extraer el filtro del equipo, se seca durante aproximadamente una hora a 105°C . Posteriormente, cada filtro se dobla para obtener una superficie de alrededor de 8×8 cm. La radiactividad en los filtros se mide con el detector de alta pureza HPGe, cuyas características se encuentran detalladas en el apartado 3.3.3.1. El tiempo de recuento es de algo más de dos días. Este sistema de medida está preparado para medir los siguiente aerosoles radiactivos indicados por el CSN: ^7Be , ^{40}K , ^{210}Pb y ^{212}Pb . En el apéndice A.3 se muestran las ecuaciones propias del comportamiento de los radionucleidos medidos mediante este equipo.



Figura 43: Vista general del equipo de alto caudal

3.3.2.2 Equipo para la medida del espectro dimensional de aerosoles radiactivos

El equipo disponible en el Campus Sud para medir el espectro dimensional de los aerosoles radiactivos es el modelo Micro-Orifice Uniform Deposit Impactor (MOUDI) modelo 100, de la empresa MSP Corporation. Se trata de un impactador en cascada destinado a la medida del espectro dimensional de los aerosoles. Dicho equipo se puede observar en la fotografía de la figura 44.



Figura 44: Vista general del impactador y bomba de aspiración de aire

El impactador en cascada está formado por una serie de etapas, cada una de ellas con un sistema de

impacto que permite discriminar las partículas de un cierto tamaño. Cada una de estas etapas tiene varios componentes, entre los que cabe destacar los imanes que fijan la superficie de impacto sobre la cual se sitúan hojas de aluminio y la etapa estacionaria que se encuentra fija, sobre la cual se sitúa la etapa rotatoria. En la figura 45 se observa un esquema de una de las etapas propias de este equipo. El principio funcionamiento del MOUDI es el mismo que para cualquier otro impactor de múltiples etapas, tal y como se presenta en el esquema de la figura 46. En cada etapa, un flujo de aire cargado con partículas incide sobre la superficie de impacto. La velocidad de entrada de las partículas se hace variable para cada etapa al disponer de distintos diámetros de corte mediante la utilización de agujeros con diferentes diámetros. Las partículas con un tamaño superior a un cierto diámetro de corte tendrán una inercia que provocará que se salgan de las líneas de corriente provocando la colisión con la superficie de impacto. Las partículas más pequeñas, con menos inercia, siguen las líneas de corriente y continúan su camino hacia la siguiente etapa, donde los agujeros son más pequeños, la velocidad del aire a través de ellos es mayor y partículas más pequeñas se quedan pegadas al filtro en esta etapa. El proceso continúa a través de la cascada del impactor de manera que partículas cada vez más pequeñas impactan en las diferentes etapas.

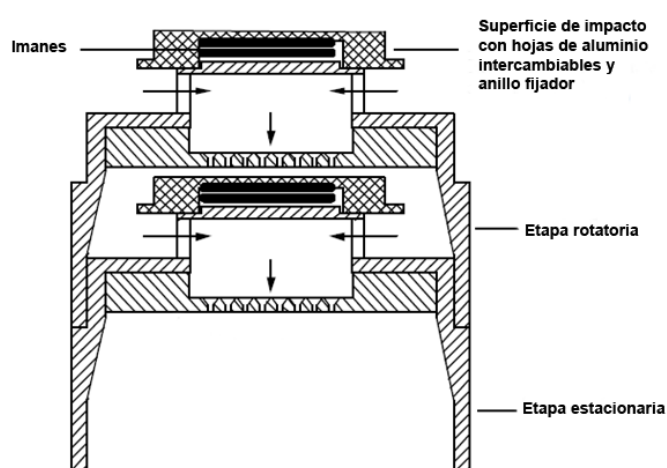


Figura 45: Equipo impactor. Esquema general de una etapa

El equipo utilizado en el INTE posee nueve etapas, siendo el flujo de entrada de 30 Lmin^{-1} . El ajuste de este caudal se realiza utilizando un caudalímetro másico TSI, modelo 3063 D. Los diámetros aerodinámicos efectivos de corte se muestran en la tabla 5.

Tal y como se ha señalado anteriormente, en cada una de las etapas existentes entre S1 y S9 se sitúa una lámina de aluminio donde impactan las partículas de los aerosoles. Dichas láminas de aluminio tienen un diámetro de 47 mm. Para eliminar el rebote de las partículas en los sustratos es necesario aplicar sobre su superficie una sustancia adherente. Esto suele suceder si se utilizan hojas de aluminio y las partículas no contienen agua. El producto utilizado es la silicona en spray HEAVY-DUTY SILICONE SPRAY que distribuye la empresa MSP Corporation. Se puede utilizar una lámina de plástico con un agujero en el centro de 37 mm de diámetro como máscara de recubrimiento para dichos sustratos. Se centra la máscara en el sustrato y se aplica silicona durante una fracción de segundo. El solvente debe evaporarse completamente del sustrato antes de ser utilizado. Esto se consigue calentando los sustratos en el horno del laboratorio LARA durante 2 horas a 100°C .

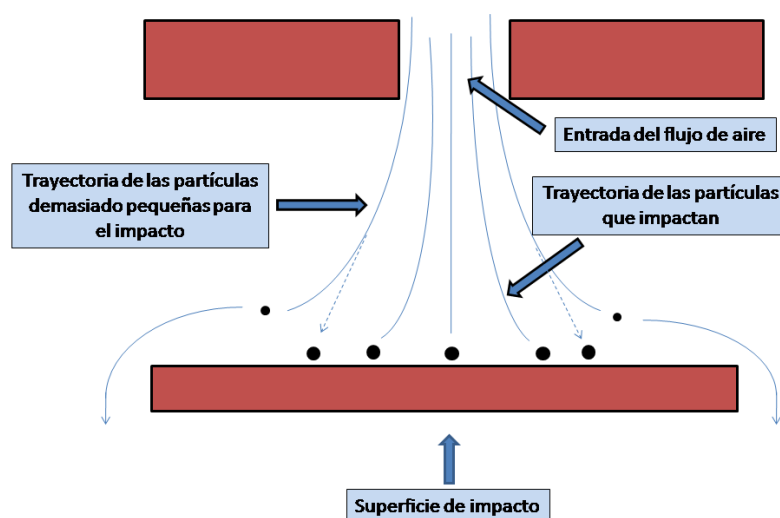


Figura 46: Representación esquemática de la dinámica de funcionamiento del impactador en una de las etapas

Tabla 5: Diámetro de corte aerodinámico y rango de medida del equipo impactador

Etapa	Diámetro de corte aerodinámico (μm)	Rango de medida (μm)
S1	18	24-13
S2	9.9	13-7.8
S3	6.2	7.8-4.8
S4	3.1	4.8-2.4
S5	1.8	2.4-1.3
S6	1.0	1.3-0.74
S7	0.56	0.74-0.41
S8	0.32	0.41-0.24
S9	0.18	0.24-0.13
F	0.057	0.13-0.01

Posteriormente se deja que se equilibre la temperatura de los sustratos con las condiciones normales de temperatura en una habitación durante 24 horas. En la última etapa (etapa F) se sitúa un filtro de fibra de vidrio. La gráfica referida por el fabricante correspondiente a la relación entre los diámetros de corte y la eficiencia de recolección de partículas se observa en la figura 47. Las curvas de eficiencia de colección de las dos primeras etapas corresponden a las dos etapas suplementarias de un impactador de 11 etapas.

Las muestras de aerosoles del MOUDI se recogen en Barcelona dos veces al mes, desde abril de 2006. El volumen aproximado de aire recogido en cada campaña es de unos 600 m^3 . La medida alfa

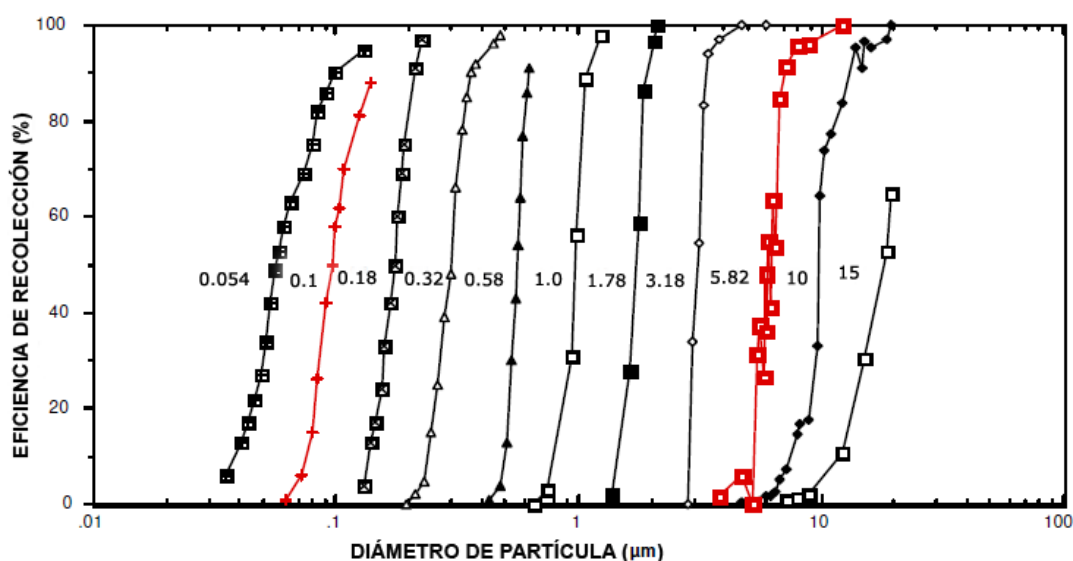


Figura 47: Curvas de eficiencia de las diferentes etapas del equipo medidor del espectro dimensional de aerosoles

total y beta total en los diferentes filtros del MOUDI se realizan mediante un contador proporcional (Berthold LB 770-2), cuyas características se encuentran detalladas en el apartado 3.3.3.2, después de un tiempo de espera superior a 15 días para que se alcance el equilibrio entre el ^{210}Bi y el ^{210}Pb , tal como se describe en el apéndice A.6 (figura 106). El tiempo que ha de transcurrir para que se desintegren por completo las partículas alfa del filtro son alrededor de 1000 días (el período de semidesintegración del ^{210}Po es de 138.38 días) y de cientos de años en el caso de las partículas beta (el período de semidesintegración del ^{210}Pb es de 22.3 años). Las ecuaciones seguidas por los radioisótopos medidos mediante este equipo se describen en el apéndice A.6. El radionucleido para el cual se han realizado medidas del espectro dimensional mediante este equipo es el ^{210}Pb mediante recuento beta. Las partículas alfa detectadas procedentes de la desintegración del ^{210}Po son debidas a átomos de ^{210}Po generados por la desintegración de ^{210}Pb existente en los filtros, y no como consecuencia del ^{210}Po recogido en el filtro mediante el proceso de aspiración de aire, tal y como se indica en el apéndice A.7. En el apartado 3.5.2.1 se encuentra detallado el método según el cual se han utilizado la actividad de ^{210}Po y ^{210}Pb mediante el recuento de alfa y beta totales. Se ha realizado espectrometría gamma a los filtros de este equipo en algunas de las campañas de medida, siendo el ^7Be el único radionucleido cuya actividad se detectó por encima del límite inferior de detección. También se ha detectado ^{210}Pb agrupando los filtros de este equipo en algunas de las campañas de medida.

3.3.2.3 Medidor de deposición seca y húmeda de aerosoles radiactivos

El equipo para la medida de los aerosoles radiactivos que se depositan ya sea en seco o mediante deposición húmeda es un equipo modelo ARS 1010, fabricado por la empresa MTX (figura 48). Permite recoger los aerosoles depositados, diferenciando de manera automática la deposición seca de la deposición húmeda. Se compone de:

1. Cubierta giratoria con cierre de gomaespuma y red anti-salpicaduras.
2. Recipiente de polietileno no-tóxico
3. Barras de aluminio para mover la tapa.
4. Base y cuerpo externo de aluminio
5. Patas de sujeción de aluminio
6. Detector de humedad en chapa de acero inoxidable.
7. Recipiente hermético para la batería y electrónica.
8. Motor de movimiento de las barras.
9. Soporte para cubeta de deposición húmeda.
10. Soporte para filtro de deposición seca.

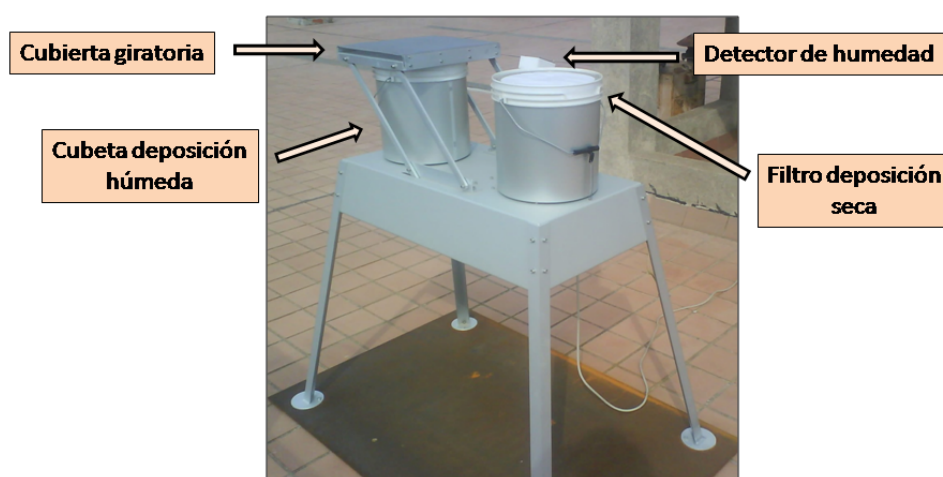


Figura 48: Equipo de deposición seca y húmeda

Si el detector de humedad se encuentra seco (lo que es similar a un circuito de baja conductividad abierto), la tapa se posiciona en la cubeta de deposición húmeda. En caso de que el detector esté húmedo, existirá una buena conductividad entre el sensor de electrodos, y la tapa se moverá para tapar el filtro de deposición seca permitiendo recoger el agua de lluvia en la cubeta.

Una vez recogidos el filtro de deposición seca y la cubeta con el agua, las muestras son analizadas con los detectores HPGe detallados en el apartado 3.3.3.1 durante un tiempo de recuento de aproximadamente dos días, tras un período de espera normalmente cercano a las dos semanas, de acuerdo al procedimiento seguido habitualmente por el LARA.

El filtro de deposición seca es un filtro de nitrato de celulosa, con un diámetro de 29.5 cm. Para favorecer la adherencia de las partículas a dicho filtro, éste se rocía con un spray de silicona HEAVY-DUTY SILICONE que distribuye la empresa MSP Corporation. Se han realizado muestreos de entre 24 y 61 días. Posteriormente se secan los filtros en la estufa durante 2 horas a 100° C, dejando reposar durante 24 horas. Para medir la actividad en el filtro este se dobla, siempre de la misma manera, de forma que adopte una geometría cuadrada de aproximadamente 7.5 cm de lado.

Para determinar la actividad del agua de lluvia, se recoge el recipiente de deposición húmeda y se mide el volumen de agua recogido con una probeta de plástico de 1 litro. Posteriormente se limpia la batea con 100 ml de ácido nítrico 4N y se junta con el volumen de agua recogido. De esta manera se evita que los radionucleidos se queden adheridos a las paredes del recipiente. Se acaba de lavar la batea con 100 ml de agua destilada certificada y se añade este lavado al volumen de agua recogido. Se realiza después el análisis de radiactividad por espectrometría gamma. Las ecuaciones que describen el comportamiento de los isótopos radiactivos medidos mediante este sistema se detallan en el apéndice A.4.

Los principales radionucleidos que pueden determinarse mediante este equipo son ^7Be , ^{210}Pb y ^{40}K en el caso de la deposición seca, y únicamente ^7Be en el caso de la deposición húmeda. En el apéndice A.4 se muestran las ecuaciones seguidas por estos radionucleidos en el equipo de deposición seca y húmeda.

3.3.3 Equipos del Laboratorio de Análisis de Radiactividad

Tal y como se ha indicado en el apartado 3.2.3, el LARA dispone de diversos equipos para el análisis de la radiactividad correspondiente a las muestras tomadas por los equipos que se encuentran en la estación de muestreo radiológico del INTE: detectores de espectrometría gamma de alta resolución, detectores de espectrometría alfa, detectores de SZn, cámaras de ionización para medidas alfa y beta y un detector de centelleo líquido. De entre ellos, a continuación se describen brevemente los equipos utilizados para la obtención de los datos utilizados en este trabajo.

3.3.3.1 Detectores de espectrometría gamma de alta resolución

El INTE posee cuatro detectores de espectrometría gamma de alta pureza de Germanio, ubicados en la sala de bajo fondo del LARA. Esta sala tiene un sistema de ventilación forzada cuya finalidad es mantener unas condiciones adecuadas de temperatura y humedad, evitando así la acumulación de gas radón en el ambiente. La geometría de los detectores es de tipo coaxial, con el contacto n en la parte exterior y el p en la interior. Estos dos contactos crean una capa en el cristal, en cuya parte frontal se sitúa la ventana de entrada normalmente construida de un material que minimiza la atenuación de la radiación gamma que entra al detector. En la parte interior del cristal de Germanio se emplaza el denominado "cold finger", que baja por todo el criostato hasta el depósito de nitrógeno líquido. El criostato donde se encuentra el detector necesita encontrarse en el vacío para evitar crear una conductividad térmica entre el cristal y el aire que lo envuelve. El preamplificador se sitúa alrededor del "cold finger" de la cámara del detector. El depósito de nitrógeno líquido se encuentra situado debajo del detector. La necesidad de enfriar el detector hasta los 77K se debe al hecho de que a temperatura ambiente se crearía una corriente térmica inducida que podría afectar a la resolución energética del detector. El depósito de nitrógeno líquido tiene una capacidad de unos 30 L. El llenado de estos bidones se efectúa aproximadamente cada semana.

La eficiencia de los detectores es de alrededor del 30-40%. La resolución es de 1.77-1.86 keV a 1.33 MeV de ^{60}Co . En la figura 49 se observa uno de los detectores de alta pureza de Germanio existentes en el laboratorio del LARA.



Figura 49: Detector de Germanio existente en el LARA

Para la calibración de los detectores de alta pureza de germanio se utilizan patrones gamma en estado líquido con una geometría de igual forma y densidad que las propias de la muestra que se pretende analizar. La elaboración de este tipo de patrones se realiza utilizando patrones radiactivos trazables de una mezcla de emisores gamma de diferentes energías, de acuerdo al informe técnico del CSN "Selección, preparación y uso de patrones para espectrometría gamma" (CSN, 2004).

3.3.3.2 Contadores proporcionales alfa y beta de bajo fondo a flujo de gas

El contador proporcional Berthold LB 770-2 existente en el LARA mide simultáneamente actividad alfa y beta en 10 planchetas, cada una de ellas de unos 60 mm de diámetro. Para cada muestra existen dos canales, uno para la medida de la actividad alfa y otro para actividad beta. La disposición de las planchetas, así como una visión general del equipo se observan en la figura 50. Los contadores proporcionales están situados directamente encima de las planchetas, y se encuentran cubiertos por una barrera de plomo de espesor 10 mm, mientras que el amplificador se encuentra situado fuera de esta barrera de plomo. La calibración de los detectores alfa de este equipo se realiza mediante un patrón de ^{241}Am . Para la calibración de los detectores beta se utiliza un patrón de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ en equilibrio.

3.4 Estimación de correlaciones entre variables radiológicas y meteorológicas

3.4.1 Introducción

En el capítulo 4 de este trabajo se presenta un análisis estadístico de los diferentes datos radiológicos y meteorológicos obtenidos mediante la instrumentación propia del INTE. Para ello, han sido correlacionadas tanto concentraciones de actividad de los radionucleidos medidos como variables



Figura 50: Contador proporcional alfa beta existente en el LARA

meteorológicas. La principal herramienta utilizada para realizar este análisis ha sido el programa estadístico informático IBM SPSS Statistics (versión 19), de común uso en las ciencias sociales y las empresas de investigación de mercado debido a su capacidad para trabajar con bases de datos de gran tamaño. Posee herramientas de análisis predictivo para usuarios comerciales, analistas y programadores estadísticos, y permite la recodificación de las variables y registros según las necesidades del usuario. El programa consiste en un módulo base y módulos anexos que se han ido actualizando constantemente con nuevos procedimientos estadísticos. El parámetro estadístico que permite estimar la relación lineal existente entre dos variables aleatorias cuantitativas es el coeficiente de correlación de Pearson. Este coeficiente es un parámetro comúnmente utilizado en la literatura científica para este tipo de correlaciones.

3.4.2 El coeficiente de correlación de Pearson

En estadística, el coeficiente de correlación de Pearson es un índice utilizado para estimar la relación lineal existente entre dos variables aleatorias cuantitativas. A diferencia de la covarianza, para realizar el cálculo de la correlación de Pearson no es necesario que las variables posean una escala de valores similar. Se calcula dividiendo la covarianza de las dos variables por el producto de sus desviaciones estándar, mediante la expresión:

$$r_{xy} = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{(n-1)s_x s_y} \quad (2)$$

Siendo r_{xy} el factor de correlación de Pearson, x_i e y_i los valores puntuales de las variables x e y , \bar{x} e \bar{y} los valores promedio de las variables, n el número de variables y s_x y s_y la desviación estándar de las variables. El coeficiente de correlación de Pearson oscila entre -1 y +1. Una correlación entre dos variables x e y es perfecta positiva cuando tiene un coeficiente de Pearson de valor +1. En este caso, la relación lineal entre ambas variables es exacta. Se dice que la relación es perfecta negativa cuando posee un valor de -1, y por tanto en la medida que aumenta una variable disminuye la otra en una proporción exacta.

La significación de r_{xy} depende en gran medida del tamaño de la muestra. Una correlación de 0.1 puede ser significativa en una muestra suficientemente grande, y otra de 0.9 no serlo en una muestra pequeña. El nivel de significación asociado al factor de correlación de Pearson ofrece información acerca de si el coeficiente de Pearson obtenido representa realmente una correlación lineal o es consecuencia del azar. En términos estadísticos, representa la probabilidad de que las variables estudiadas posean un coeficiente de Pearson igual a cero. Desde el supuesto de la hipótesis nula se demuestra que una distribución muestral procedente de una población caracterizada por una correlación igual a cero sigue una ley de Student con $N-2$ grados de libertad. En este trabajo se presenta el nivel de significación como la probabilidad de que exista una correlación lineal entre ambas variables. Por tanto, un nivel de significación de valor 0.01 representará un 99% de probabilidades de que no se cumpla la hipótesis nula y por tanto exista linealidad entre ambas variables.

3.5 Estimación del tiempo de residencia

3.5.1 Introducción

El aire es un medio natural de una gran importancia radiológica pues la radiactividad presente en él puede recorrer grandes distancias, depositándose posteriormente en el suelo mediante deposición seca o húmeda. Así pues, el tiempo de residencia medio es un parámetro de interés para caracterizar los aerosoles radiactivos atmosféricos. Existen diferentes métodos para realizar estimaciones del tiempo de residencia medio del aerosol, tales como el cociente de actividades o el crecimiento del diámetro aerodinámico medio radiactivo o activity median aerodynamic diameter (AMAD). En este apartado se pretende realizar un resumen de los diferentes métodos encontrados en la literatura.

3.5.2 El método del cociente de actividades

El método del cociente de actividades estima el tiempo de residencia promedio mediante la resolución de la ecuación de desintegración de un par de radioisótopos padre-hijo (Papastefanou and Bondietti, 1991):

$$\frac{dN_d}{dt} = N_p \lambda_p - N_d (\lambda_d + \lambda_R) \quad (3)$$

Donde N_d es el número de átomos en el aire del radionucleido hijo, N_p es el número de átomos del padre, λ_p y λ_d son las constantes de desintegración y λ_R es el inverso del tiempo de residencia promedio del aerosol ($\lambda_R = \frac{1}{\tau_R}$). Dicha ecuación requiere que la única manera de generarse N_d sea por desintegración del padre N_p . Si asumimos un estado estacionario, $\frac{dN_d}{dt} = 0$ de la ecuación 3 se obtiene la siguiente expresión de la que puede obtenerse λ_R . Por tanto:

$$\frac{N_d \lambda_d}{N_p \lambda_p} = \frac{\lambda_d}{(\lambda_d + \lambda_R)} \quad (4)$$

Por lo que λ_R vendrá expresado como:

$$\lambda_R = \lambda_d \left(\frac{N_p \lambda_p}{N_d \lambda_d} - 1 \right) \quad (5)$$

Dicha expresión puede utilizarse con diferentes aproximaciones y radionucleidos en función de las condiciones en que se realice la estimación del tiempo de residencia. Así, se ha encontrado en la literatura diferentes métodos mediante el uso del método del cociente de actividades.

3.5.2.1 El método del cociente de actividades $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$

Este método ha sido aplicado en diversos trabajos, como en García-Talavera et al. (2001). A partir de la cadena de desintegración del ^{238}U (figura 16), se puede indicar que:

1) El ^{210}Pb tiene la mayor contribución a las medidas de actividad beta total. La contribución de los descendientes de vida corta del gas radón se pueden descartar en caso de que el recuento de actividad se produzca varios días después del muestreo pues habrían decaído hasta niveles despreciables. El ^{210}Bi es también un emisor beta de mayor energía, pero se considera en equilibrio con el propio ^{210}Pb , tal y como se muestra en el apéndice A.6.

2) El ^{210}Po tiene la contribución más importante a la actividad alfa total. Los descendientes de vida corta pueden ser descartados por el motivo indicado anteriormente, lo cual significa que el ^{210}Po es el único emisor alfa relevante de la cadena de desintegración del ^{222}Rn . Respecto a los descendientes del torón, todos los radionucleidos pueden ser descartados dado que ninguno de ellos tiene una vida suficientemente larga como para ser detectado al cabo de más de una semana después del muestreo. Tal y como se observa en la figura 18, los emisores alfa ^{216}Po , ^{212}Bi , ^{212}Po y ^{212}Pb tienen un período de semidesintegración de 0.15 segundos, 60.55 minutos, 298 ns y 10.64 horas respectivamente.

La expresión general a seguir para calcular el tiempo de residencia mediante el método del cociente de actividades es la ecuación 3. Pero en casos en que los radioisótopos están separados por un isótopo intermedio, como por ejemplo en el caso del ^{210}Po al ^{210}Pb (vía ^{210}Bi), el ratio viene dado por la ecuación 6 (Robbins, 1978), pudiendo ser despejado el tiempo de residencia ($\tau_R = \frac{1}{\lambda_R}$).

$$\frac{N_{210\text{Po}} \lambda_{210\text{Po}}}{N_{210\text{Pb}} \lambda_{210\text{Pb}}} = \frac{\lambda_{210\text{Po}} \lambda_{210\text{Bi}}}{(\lambda_{210\text{Bi}} + \lambda_R)(\lambda_{210\text{Po}} + \lambda_R)} \quad (6)$$

Este método presenta los siguientes inconvenientes, por los cuales ha sido descartado:

- Varias fuentes artificiales tales como emisiones de volcanes, quema de combustibles fósiles o incendios forestales podrían contribuir a aumentar el recuento de partículas de ^{210}Po . También deberían ser consideradas otras fuentes como fertilizantes, fábricas cementeras y de producción de metales. Este hecho podría dar lugar a algunos errores en el cálculo del tiempo de residencia.

- El período de semidesintegración del ^{210}Po es de 138.38 días mientras que el tiempo transcurrido desde que el filtro se retira hasta que se realiza la medida de su actividad es de un mínimo de dos semanas. El ^{210}Bi se desintegrará durante estos días a ^{210}Po . Como consecuencia, tal y como se indica en el apéndice A.7 y en otros trabajos (Lozano et al., 2011), este método no puede ser utilizado ya que su incertidumbre es muy elevada por el bajo número de partículas alfa recogidas del aire en comparación con las totales que se han detectado.

3.5.2.2 El método del cociente de actividades $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$

Este método es aplicable en caso de que el tiempo de espera entre el final del muestreo y el análisis de los filtros sea inferior al tiempo de vida medio del ^{210}Bi (5.013 días), a fin de evitar su desintegración. Teniendo en cuenta que tanto el ^{210}Bi como el ^{210}Pb son emisores beta, es necesario utilizar la separación radioquímica para diferenciarlos. Una vez separadas se puede aplicar el método del cociente de actividades para calcular el tiempo de residencia (Papastefanou and Bondietti, 1991). Aplicando la ecuación 4, obtenemos:

$$\frac{N_{210\text{Bi}}\lambda_{210\text{Bi}}}{N_{210\text{Pb}}\lambda_{210\text{Pb}}} = \frac{\lambda_{210\text{Bi}}}{(\lambda_{210\text{Bi}} + \lambda_R)} \quad (7)$$

Este sistema no se ha utilizado en este trabajo porque la separación química del ^{210}Bi y el ^{210}Pb es un método que por el momento no ha sido implementado en el laboratorio LARA del INTE.

3.5.2.3 El método del cociente de actividades $^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$

Mediante este método, se obtiene una expresión del tiempo de residencia en función del cociente de actividades entre el ^{210}Pb y el ^{222}Rn o uno de los descendientes de vida corta del ^{222}Rn . Este método ha sido ya previamente aplicado en el caso del ^{214}Po (Gäggeler et al and P. Seibert, 1994), siendo necesario tener un sistema de medida que nos permita medir concentraciones de descendientes de vida corta. El valor del tiempo de residencia de las partículas en la atmósfera se puede calcular mediante la aproximación de la ecuación siguiente:

$$\tau_R = \frac{N_{210\text{Pb}}\lambda_{210\text{Pb}}}{N_{222\text{Rn}}\lambda_{222\text{Rn}}} \lambda_{210\text{Pb}}^{-1} \quad (8)$$

Siendo $N_{222\text{Rn}}\lambda_{222\text{Rn}}$ la actividad correspondiente al ^{222}Rn o a cualquier descendiente de vida corta del ^{222}Rn . También se ha encontrado en la literatura el uso del método del cociente de actividades $^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Pb}$ (Ahmed et al, 2004), aplicable en condiciones similares a las del método anterior pues en ambos casos la actividad del ^{210}Pb se divide entre la de un descendiente de vida corta del ^{222}Rn .

El principal inconveniente por el cual ha sido descartado este método para el cálculo del tiempo de residencia es que el origen de las masas de aire que transporta a ambos radionucleidos puede ser diferente dado que el período de semidesintegración del ^{222}Rn es de 3.83 días, mientras que el del ^{210}Pb es de 22.3 años. Por tanto el tiempo de residencia obtenido mediante este par de radioisotopos podría no ser significativo del tiempo de residencia del aerosol radiactivo.

3.5.3 El método AMAD

El diámetro aerodinámico es el parámetro que define el tamaño de las partículas de un aerosol atmosférico. Existe un amplio rango de tamaños de partículas existentes en la atmósfera. Las propiedades físicas de los aerosoles dependen mucho del tamaño de partícula, motivo por el cual es necesario caracterizar de alguna manera estas distribuciones de tamaño mediante promedios

estadísticos. Las estadísticas estándar basadas en distribuciones logarítmico-normales suelen ser muy apropiadas para caracterizar la mayoría de distribuciones de tamaño de partículas aéreas. Generalmente, las distribuciones lognormales suelen ser las que mejor ajustan en aerosoles típicos. En ellas, el valor más probable de la media se acerca a la media geométrica, y la desviación estándar geométrica o sigma (σ_g) evidencia la dispersión de la distribución. No existe ninguna razón teórica como explicación para este hecho, pero empíricamente es el mejor ajuste. En la figura 51 se muestra una distribución lognormal típica de tamaño de partícula de ^{210}Pb , en una muestra tomada entre el 21 de mayo de 2008 y el 4 de junio de 2008 en la estación de muestreo radiológico del Campus Sud del INTE.

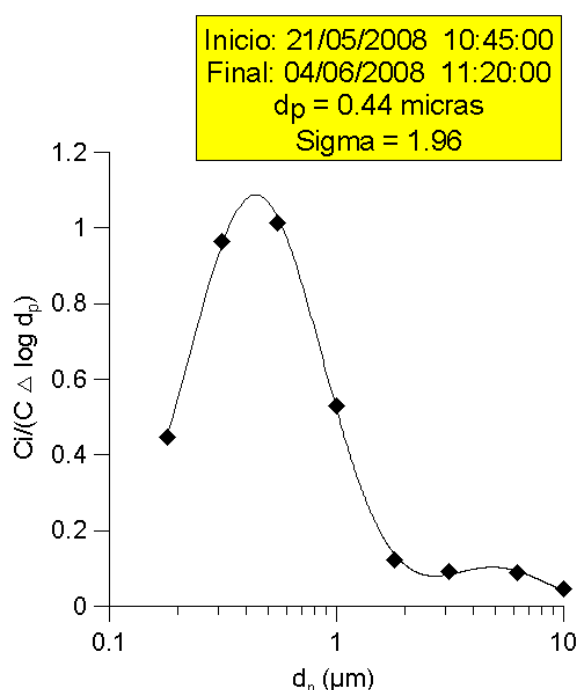


Figura 51: Distribución lognormal típica de tamaño de partícula para ^{210}Pb

El crecimiento del tamaño de los aerosoles, en particular de su diámetro aerodinámico mediano radiactivo ("activity median aerodynamic diameter" o AMAD) con respecto al tiempo, puede ser una importante herramienta para el cálculo del tiempo de residencia de los aerosoles en la atmósfera, en especial para aquellos que se encuentran en la moda acumulación. Dichos aerosoles crecen principalmente mediante condensación y coagulación (McMurry & Wilson, 1982). Por tanto el cálculo del tiempo de residencia se reduce a un cociente entre el crecimiento de su AMAD, y su velocidad media de crecimiento "mean growth rate" (MGR):

$$\tau_R = \frac{(AMAD)_{final} - (AMAD)_{inicial}}{MGR} \tag{9}$$

3.5.3.1 El método AMAD de crecimiento del ^7Be

El tiempo de residencia del aerosol se calcula dividiendo la diferencia de AMAD en su origen y en el lugar de medida de los aerosoles de ^7Be entre la velocidad de crecimiento (Papastefanou and Ioannidou, 1994), tal y como indica la expresión 10:

$$\tau_R = \frac{(AMAD)_{medido} - (AMAD)_{nucleacion}}{MGR} \quad (10)$$

El numerador de esta expresión viene dado por la distribución de tamaño final promedio del ^7Be o $(AMAD)_{medido}$ menos el tamaño inicial del ^7Be correspondiente a la nucleación o $(AMAD)_{nucleacion}$. El ^7Be posee una distribución trimodal con los siguientes rangos: moda de nucleación de 0.003 a 0.07 μm , de AMAD 0.015 μm (NRC, 1979), moda acumulación con rangos de entre 0.07 a 2 μm y por último modo grueso con un rango de 2 a 36 μm . Por tanto el AMAD inicial del ^7Be corresponde al de la moda nucleación. MGR o "mean growth rate" es la velocidad de crecimiento y su valor es de entre 0.004 y 0.005 $\mu\text{m h}^{-1}$ (Mc Curry and Wilson, 1982).

3.5.3.2 El método AMAD de crecimiento del ^{210}Pb

El diámetro de la partícula crece según se desintegran los descendientes de vida corta del ^{222}Rn , desde ^{214}Pb a ^{210}Pb . Aplicando la ecuación 9, obtenemos:

$$\tau_R = \frac{(AMAD)_{210Pb} - (AMAD)_{214Pb}}{MGR} \quad (11)$$

Siendo $(AMAD)_{210Pb}$ el AMAD correspondiente al ^{210}Pb y $(AMAD)_{214Pb}$ el correspondiente al ^{214}Pb . Para conocer el AMAD del ^{214}Pb , al ser éste un descendiente de vida corta del ^{222}Rn , se mide nada más retirar el filtro expuesto, evitando así la desintegración de todos sus átomos. El cálculo de la velocidad de crecimiento muestra un valor de 0.001 $\mu\text{m h}^{-1}$ (Bondietti et al., 1986).

Para la realización de las estimaciones sobre tiempos de residencia en este trabajo se ha utilizado el método del diámetro AMAD correspondiente al crecimiento del ^{210}Pb mediante el equipo para la medida del espectro dimensional de aerosoles radiactivos, detallado en la sección 3.3.2. La expresión utilizada para realizar la estimación del tiempo de residencia del aerosol será por tanto la ecuación 11. Tal y como se puede intuir observando dicha ecuación, el tiempo de residencia estimado mediante este método es muy sensible al AMAD inicial que corresponde al tamaño del ^{214}Pb . Se han encontrado diferentes valores de AMAD del ^{214}Pb en la literatura: desde 0.16 μm (Bondietti et al, 1986) hasta 0.37 μm (Reineking et al, 1986). Para caracterizar este valor se han obtenido diversos valores de ^{214}Pb midiendo las actividades justo después del final de cada campaña, antes de que se produzca la desintegración del ^{214}Pb . La metodología seguida para realizar estas medidas se encuentra descrita en mayor detalle en el apartado 5.2.1 de este trabajo.

3.6 Estimación de parámetros de deposición seca y húmeda

3.6.1 Deposición seca

Las partículas de los aerosoles se depositan en el suelo mediante diferentes procesos. La deposición de las partículas de los aerosoles en ausencia de precipitación al adherirse a pequeñas partículas sólidas se conoce como deposición seca. Los estudios sobre la velocidad de deposición son útiles para predecir la dosis recibida por una población a través de la cadena trófica.

La velocidad de deposición seca, V_d , en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ se define como:

$$V_d = \frac{F(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1})}{C_{air}(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3})} \quad (12)$$

Donde F es el flujo de deposición de las partículas radiactivas atmosféricas en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ y C_{air} es la concentración volumétrica del radionucleido en el aire, en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$.

Para realizar los cálculos relativos a la deposición seca se ha utilizado el equipo de deposición seca y húmeda descrito en el apartado 3.3.2.3. El único radionucleido cuya actividad sobrepasa en cada uno de los filtros analizados el límite inferior de detección es el ^7Be . La actividad del ^{210}Pb puede llegar a sobrepasar también el valor del límite inferior de detección en caso de que se junten varios filtros al medir. Por tanto las estimaciones de velocidad de deposición seca en este trabajo serán relativas a estos dos elementos. La metodología seguida para realizar estas medidas se encuentra descrita en el apartado 3.3.2.3. Las ecuaciones que detallan el comportamiento de ambos radionucleidos en este equipo se encuentran descritas en el apéndice A.4.

Por último, tal y como se desprende de la ecuación 12, para el cálculo de la velocidad de deposición, es necesario también conocer la concentración del radionucleido en el aire. Este valor se ha obtenido promediando para cada episodio de concentración de actividad recogidos semanalmente en el equipo de alto volumen. La metodología seguida para realizar estas medidas de concentración de actividad en el aire se encuentran detalladas en el apartado 3.3.2.1.

3.6.2 Deposición húmeda

En este apartado se estudia el proceso de deposición de partículas radiactivas mediante deposición húmeda. Tal y como se ha indicado en el apartado 2.1, la deposición húmeda se puede producir mediante dos procesos: *rainout* y *washout*.

Las medidas de deposición húmeda se han expresado muy frecuentemente en términos del coeficiente de lavado por deposición húmeda (W). Este término no tiene dimensiones, y se determina como (Papastefanou y Ioannidou, 1991; McNeary y Baskaran, 2003):

$$W = \rho \frac{C_{lluvia}}{C_{aire}} \quad (13)$$

Donde ρ es la densidad del aire en condiciones estándar (1.2 kg/m^3 a 20°C y 0.76 m Hg), C_{lluvia} la concentración del radionucleido en el agua de lluvia en Bq/kg , y C_{aire} es la concentración del radionucleido en el aire en Bq/m^3 . En las campañas de medida realizadas solo se ha medido ^7Be ya que el resto de posibles radionucleidos no han sobrepasado el límite inferior de detección. Las ecuaciones seguidas por este radionucleido durante la deposición húmeda se encuentran detalladas en el apéndice A.4.

Parte III

Resultados

4 Análisis estadístico de los aerosoles radiactivos en Barcelona

4.1 Introducción

En el presente capítulo se exponen los resultados obtenidos mediante el análisis estadístico realizado con los datos recopilados a través de la instrumentación y metodología detallados en el capítulo 3. Para ello se ha utilizado el software SPSS, cuyas principales características se encuentran descritas en el apartado 3.4.1. Mediante este software se ha realizado un estudio acerca de las evoluciones temporales de concentración de actividad y tasa de dosis ambiental, analizando su correlación con los parámetros meteorológicos tales como velocidad del viento, dirección de viento, temperatura o lluvia. La altura de la capa de mezcla y el nivel de estabilidad meteorológica influyen también en los niveles de concentración de los radionucleidos presentes en la atmósfera. Los datos de altura de capa de mezcla y estabilidad meteorológica han sido obtenidos a través de la web del Air Resources Laboratory (ARL) (<http://www.arl.noaa.gov/>), que ofrece de manera pública datos de diferentes variables meteorológicas para diferentes puntos geográficos en intervalos de 3 horas. La herramienta utilizada para la descarga de estos datos fue el módulo Real Time Environmental Applications and Display System (READY) (<http://ready.arl.noaa.gov/>), sistema desarrollado para proporcionar datos meteorológicos y trayectorias de partículas desde la propia web del ARL. Este sistema lleva instalado modelos de dispersión, programas de monitorización de gráficos y programas de pronóstico meteorológico. La aplicación de READY utilizada para la obtención de los datos de altura de capa de mezcla permite a los usuarios obtener datos meteorológicos para cualquier punto del mundo basándose en los datos meteorológicos proporcionados por el National Center for Environmental Prediction (NCEP) (<http://www.ncep.noaa.gov/>). Los radionucleidos medidos con la instrumentación radiológica existente en el INTE ha permitido llevar a cabo el análisis estadísticos de los descendientes de vida corta del ^{222}Rn , de su descendiente de vida larga ^{210}Pb y de ^7Be , ^{40}K y ^{137}Cs en aerosoles.

4.2 Descendientes de vida corta del ^{222}Rn

El análisis de las concentraciones de descendientes de ^{222}Rn se ha realizado utilizando los datos recogidos durante el período de 5 años comprendidos entre 2005 y 2009. La frecuencia de datos con los que se ha trabajado para realizar este estudio es de uno cada hora. Por tanto, a lo largo de 5 años, existen un total de 43824 datos. En la tabla 6 se ofrece el porcentaje de datos disponibles para cada una de las variables estudiadas. Las sondas meteorológicas presentan un elevado porcentaje de datos. El porcentaje de datos disponibles para la concentración de ^{222}Rn disminuye notablemente dado que existe una cierta discontinuidad en los datos adquiridos por el monitor de aerosoles radiactivos debido a algunas paradas en su funcionamiento para realizar reparaciones, cambio de filtros o mejoras técnicas. La más relevante fue la instalación del detector de NaI como parte de un proyecto destinado a la medición de actividad de radionucleidos emisores gamma. Los análisis

realizados muestran variaciones cíclicas regulares tanto horarias como mensuales. Respecto a las correlaciones con la meteorología, son diversos los factores que influyen en la concentración de estos radionucleidos y que se analizan con detalle a continuación.

Tabla 6: Porcentaje de datos disponibles

Variable	Porcentaje disponible
Presión	84.98%
Temperatura	84.98%
Radiación Solar	84.98%
Lluvia	84.79%
Dirección de viento	66.74%
Humedad relativa	83.74%
Velocidad de viento	83.96%
Concentración de ^{222}Rn	54.45%

En la figura 52 se muestra el ajuste de la concentración de descendientes de vida corta del ^{222}Rn en función de su frecuencia, a partir de los datos registrados con el monitor de aerosoles radiactivos en continuo durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009. Dicho ajuste sigue una distribución lognormal, con un máximo de valor 2.01 Bq/m^3 , y una desviación geométrica estándar de valor 1.92.

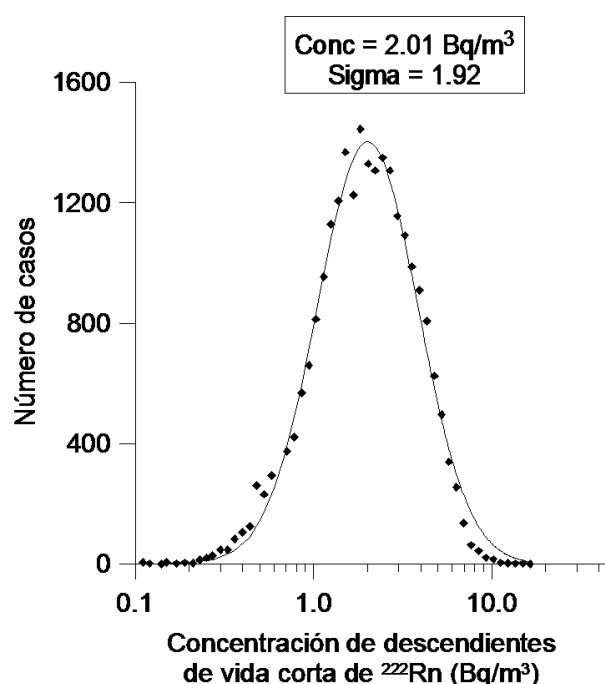


Figura 52: Ajuste logarítmico normal por frecuencias de la concentración de descendientes de ^{222}Rn

A continuación se analiza la evolución diaria, mensual y estacional de la concentración de los descendientes de ^{222}Rn , así como su correlación con diferentes variables meteorológicas.

4.2.1 Evolución diaria

En la figura 53 se ha representado un promedio horario de la evolución de la concentración de los descendientes de ^{222}Rn entre los años 2005 y 2009, en función de la hora UTC.

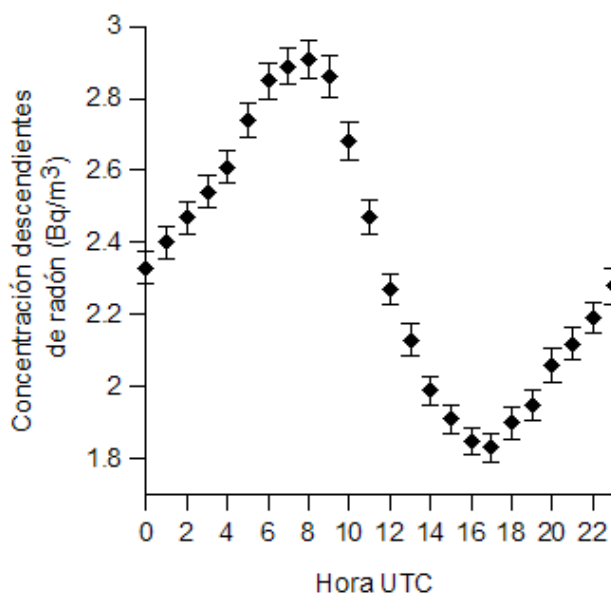


Figura 53: Concentración descendientes ^{222}Rn promediado con la hora del día en el período comprendido entre los años 2005 y 2009. Monitor de aerosoles radiactivos en continuo

Los resultados mostrados son acordes a los de trabajos desarrollados previamente en el INTE, tal y como se puede comprobar observando la figura 26 o los resultados mostrados en otros trabajos (Cortés, 2001 o Arnold, 2009). La evolución del ^{222}Rn a lo largo de un día completo presenta un máximo correspondiente a las primeras horas de la mañana y un mínimo durante la tarde. En general, la concentración de ^{222}Rn tiende a incrementarse durante las horas nocturnas, y a sufrir una tendencia descendente durante el día, como ya se ha comentado anteriormente en el apartado 2.5.5. El motivo se encuentra en la variación de la altura de la capa de mezcla. Otro aspecto característico de Barcelona es que al ser una ciudad costera, las brisas marinas durante el día presentan influencia también en el descenso de la concentración de ^{222}Rn en horas diurnas, ya que tal y como ha sido comentado en el apartado 4.2, las brisas marinas diurnas transportan masas de aire procedentes del mar con una baja concentración de descendientes de vida corta de ^{222}Rn . Estas brisas diurnas podrían verse reflejadas La evolución de los descendientes de ^{222}Rn con la capa de mezcla se ha representado en la figura 54. Como se puede observar ambas siguen una tendencia inversa. Las barras de incertidumbre corresponden a la desviación típica del valor obtenido al promediar por horas la concentración de descendientes de ^{222}Rn y la altura de la capa de mezcla. Existe un cierto desfase temporal entre ambas. Este retraso de la evolución de descendientes de ^{222}Rn refleja el tiempo necesario para que la evolución de la altura de la capa de mezcla tenga incidencia en la concentración de descendientes de ^{222}Rn , como consecuencia del lento progreso de la capa de mezcla a lo largo del día (Newstein et al., 1971).

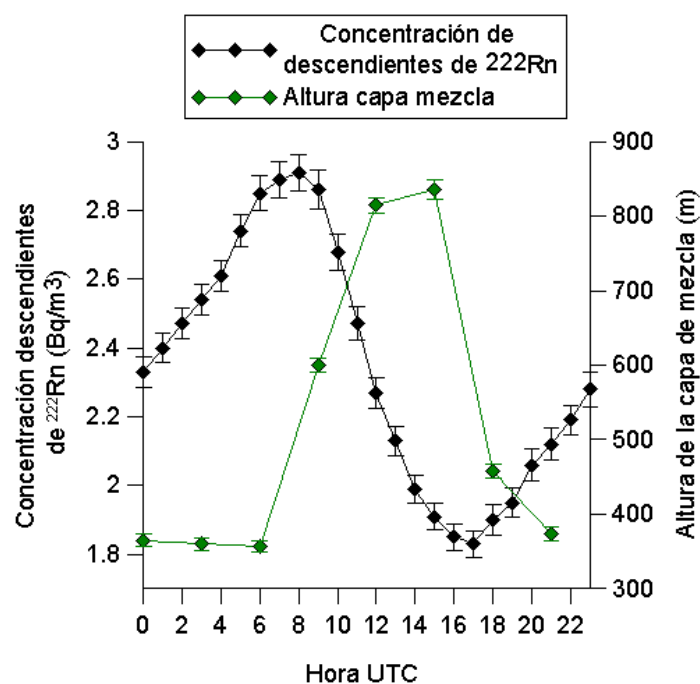


Figura 54: Concentración de los descendientes de ^{222}Rn frente a la altura de la capa de mezcla promediados con la hora del día en el período comprendido entre los años 2005 y 2009

En la figura 55 se observan dos periodogramas realizados mediante el software SPSS para las medidas de concentración de descendientes de ^{222}Rn . El pico visible en la gráfica de la izquierda corresponde a una frecuencia de valor 0.042 h^{-1} , lo cual coincide con un período de aproximadamente 24 horas, lo que confirma estadísticamente el ciclo de variación diario propio de los descendientes de ^{222}Rn . Los picos iniciales se pueden interpretar como la señal entre la que se encuentra el máximo correspondiente al ciclo de variación anual propio de la concentración de los descendientes de ^{222}Rn . Para confirmar este ciclo anual se ha realizado un promedio mensual del valor de concentración de los descendientes ^{222}Rn . El pico visible en la gráfica de la derecha se corresponde con una frecuencia de valor $0,083 \text{ meses}^{-1}$, lo cual confirma de manera estadística el ciclo de variación anual de este radionucleido. El resto de picos menos significativos tienen una altura de menos del 10% con respecto al pico principal de la gráfica, y son probablemente consecuencia del ruido resultante del cálculo de la densidad espectral propia del periodograma.

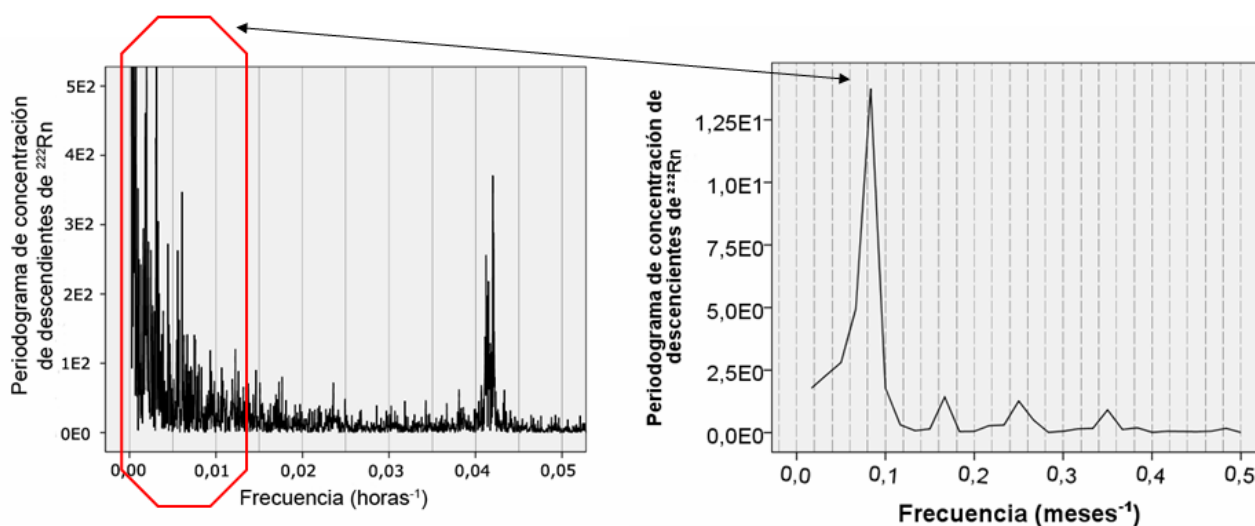


Figura 55: Periodogramas de los descendientes de vida corta de ^{222}Rn por hora y meses durante el período comprendido entre 2005 y 2009

4.2.2 Evolución estacional

La variación estacional de la concentración horaria de los descendientes de ^{222}Rn ha sido analizada mediante la representación del promedio horario de la evolución de los descendientes de ^{222}Rn según la estación del año, tal y como se puede apreciar en la figura 56. En dicha gráfica se observa que la concentración es mayor durante los meses de invierno, mientras que en los meses de primavera y especialmente verano la concentración de descendientes de ^{222}Rn es menor. Además, el rango entre el cual varía la concentración de descendientes de ^{222}Rn es menor durante el invierno. El motivo principal se encuentra una vez más en la altura de la capa de mezcla. Se aprecia además la diferencia entre la hora de salida y puesta de sol para cada una de las diferentes estaciones del año. Durante el verano existe un mayor número de horas de luz, siendo el invierno la estación con menos horas de luz diarias. En la figura 57 se ha representado la variación de la capa de mezcla para las diferentes estaciones del año, donde se aprecia que su variación es menor durante la época invernal. Tanto en la figura 56 como en la 57, las barras de incertidumbre corresponden a la desviación típica del valor de altura de capa de mezcla promediado por horas.

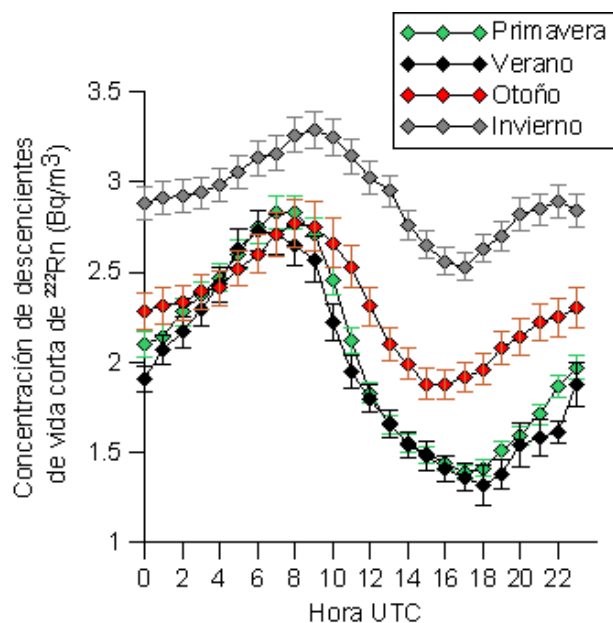


Figura 56: Concentración de descendientes de vida corta del ^{222}Rn promediado con la hora del día en el período comprendido entre los años 2005 y 2009, para las diferentes estaciones del año. Monitor de aerosoles radiactivos en continuo

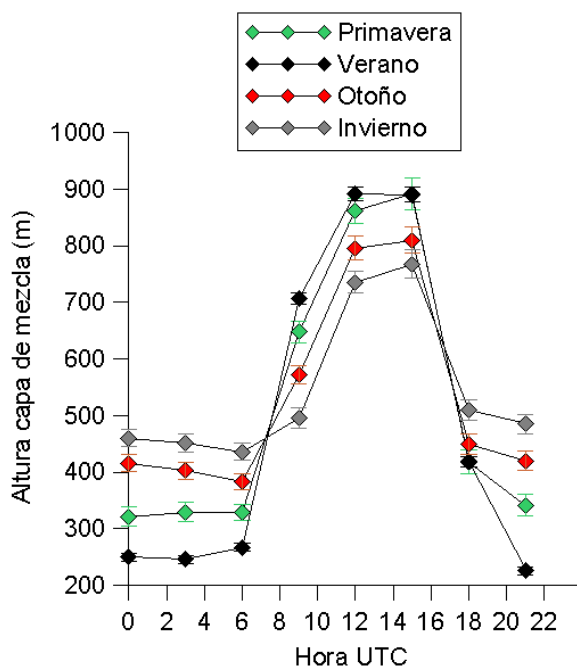


Figura 57: Altura de la capa de mezcla promediada con la hora del día en el período comprendido entre los años 2005 y 2009

4.2.3 Evolución mensual

En la gráfica 58 se puede observar la evolución de los descendientes de ^{222}Rn en función del mes del año, y su correlación con el promedio mensual de la temperatura. Durante los meses cálidos se observa una menor concentración de descendientes mientras que la concentración de éstos alcanzan cotas mayores durante los meses fríos, debido principalmente a la evolución mensual de la capa de mezcla. Las barras de incertidumbre de la concentración de los descendientes de ^{222}Rn corresponden a la desviación típica de su valor promediado mensualmente.

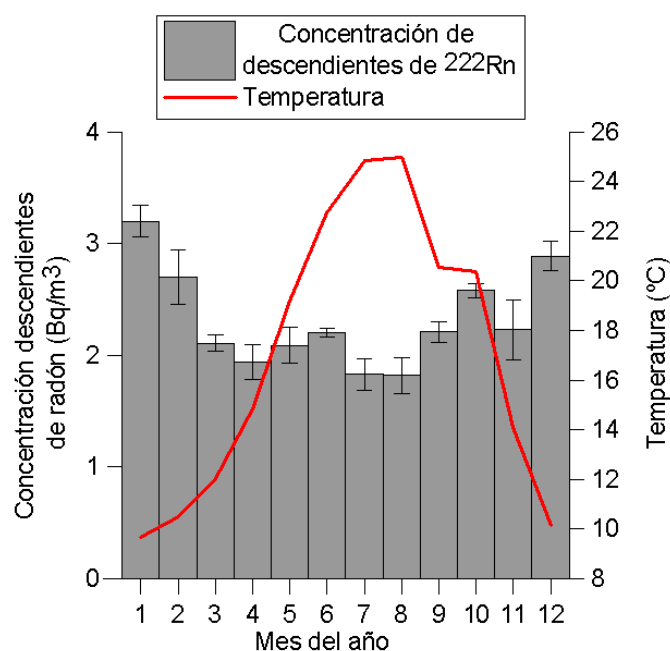


Figura 58: Promedio mensual de concentración de descendientes de ^{222}Rn frente a temperatura en el período comprendido entre los años 2005 y 2009. Monitor de aerosoles radiactivos en continuo

4.2.4 Correlación de los descendientes de ^{222}Rn con variables meteorológicas

4.2.4.1 Introducción

La concentración de actividad de descendientes de ^{222}Rn se puede relacionar con diferentes variables meteorológicas. En esta sección se pretende hacer un aporte que evalúe la relación entre dichas variables. En primer lugar, se realiza una correlación con la temperatura, presión atmosférica, humedad relativa, radiación solar, velocidad de viento y dirección de viento. Para ello se contrastan los datos de concentración de descendientes de ^{222}Rn con los datos meteorológicos proporcionados por las sondas existentes en la estación radiometeorológica del Campus Nord. Posteriormente se analizará la relación del agua de lluvia con la concentración de descendientes de ^{222}Rn .

4.2.4.2 Correlación de los descendientes de ^{222}Rn con temperatura, humedad relativa, radiación solar, presión atmosférica y viento

La evolución de la temperatura y velocidad del viento se encuentra representada en la figura 59. Como ya se ha explicado, ambas variables presentan una tendencia inversa con respecto a la concentración de descendientes de ^{222}Rn .

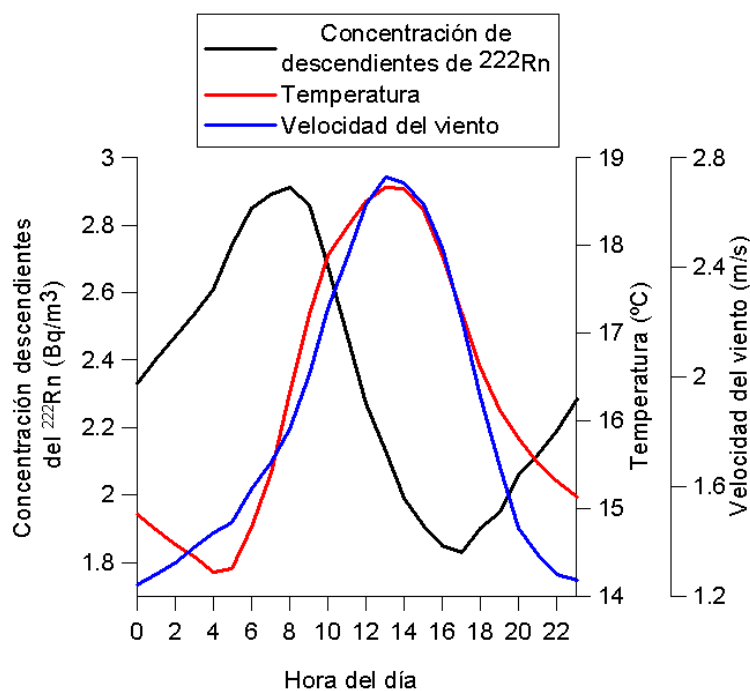


Figura 59: Concentración descendientes ^{222}Rn frente a la temperatura y velocidad de viento, promediado por horas durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009

Para confirmar esta tendencia inversa, se han realizado los ajustes lineales de los valores de concentración de descendientes de vida corta de ^{222}Rn con la temperatura y la velocidad del viento para las horas nocturnas y diurnas. El ajuste mostrado en la figura 60 relativo a la temperatura confirma que esta variable tiene una correlación inversa con los descendientes de ^{222}Rn . El ajuste referente a la velocidad del viento que se puede observar en la figura 61 muestra que las situaciones con menos viento y por tanto mayor estabilidad meteorológica favorecen la presencia de una mayor concentración de ^{222}Rn en el aire. Además, el hecho de que durante la noche la concentración de descendientes de ^{222}Rn sea mayor, confirma que la concentración tiende a aumentar durante las horas nocturnas y a disminuir durante las horas diurnas, tal y como se indica en el apartado 4.2.1. Las barras de incertidumbre de cada uno de los puntos han sido calculadas a partir de la desviación típica de los promedios de las diferentes variables.

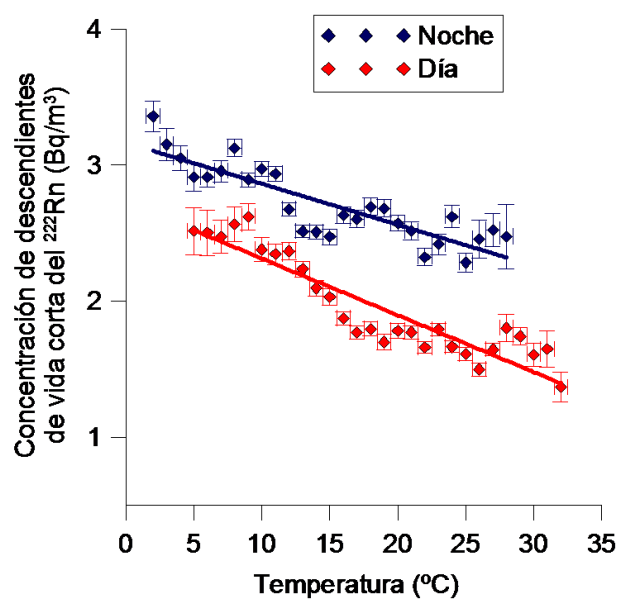


Figura 60: Ajuste lineal nocturno y diurno de la concentración descendientes de vida corta del ^{222}Rn con la temperatura

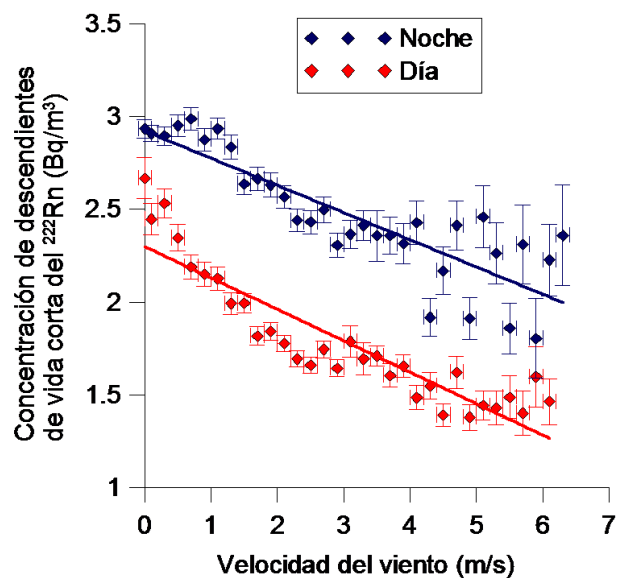


Figura 61: Ajuste lineal nocturno y diurno de la concentración descendientes de vida corta del ^{222}Rn con la velocidad del viento

En la tabla 7 se muestran las ecuaciones obtenidas como resultado del ajuste lineal entre la concentración de descendientes de vida corta del ^{222}Rn y estas variables meteorológicas para las horas nocturnas y diurnas.

Tabla 7: Ecuaciones resultantes del ajuste lineal entre la concentración de descendientes de vida corta del ^{222}Rn y la temperatura y velocidad del viento

VARIABLES CORRELACIONADAS	Ecuación lineal	R ²
Descendientes de vida corta de ^{222}Rn (y) y temperatura (x) durante la noche	$y = -0.14x + 2.92$	0.74
Descendientes de vida corta de ^{222}Rn (y) y temperatura (x) durante el día	$y = -0.17x + 2.30$	0.82
Descendientes de vida corta de ^{222}Rn (y) y velocidad del viento (x) durante la noche	$y = -0.03x + 3.16$	0.75
Descendientes de vida corta de ^{222}Rn (y) y velocidad del viento (x) durante el día	$y = -0.04x + 2.73$	0.85

La evolución de la radiación solar y humedad relativa con los descendientes de ^{222}Rn se puede observar en la figura 62. Ambas presentan una tendencia inversa entre sí por los motivos indicados en el apartado 2.5.5.

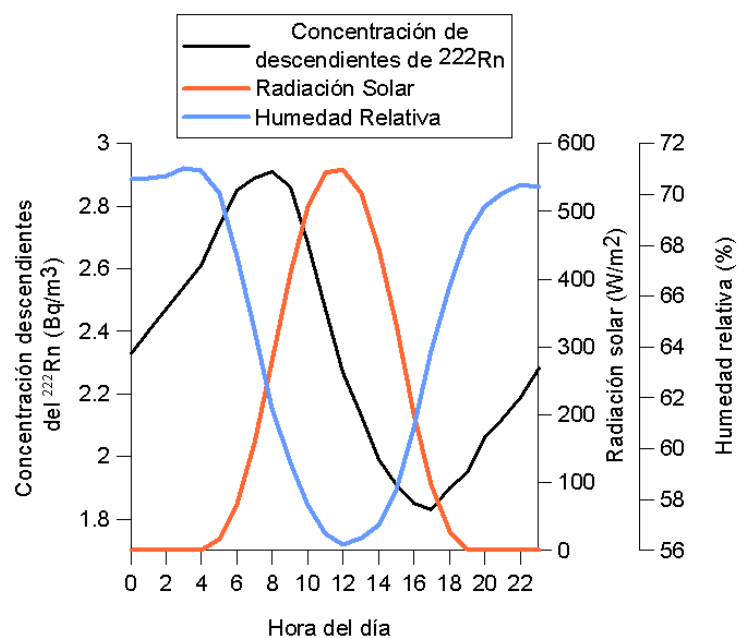


Figura 62: Concentración descendientes ^{222}Rn frente a la radiación solar y humedad relativa, promediado por horas durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009

En la gráfica 63 se muestran los resultados de concentración de descendientes de ^{222}Rn en función de la dirección para distintos rangos de velocidad de viento, promediados durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009. Los datos de dirección de viento han sido facilitados por la estación meteorológica de la Universitat de Barcelona, ubicada en el tejado de facultad de física (Av. Diagonal, 647, 08028), encontrándose por tanto próxima a la estación meteorológica del INTE. Las coordenadas UTM (huso 31) de esta estación son Este 426140.81 m y Norte 4581893.82 m, que corresponden a Latitud $41^\circ 23' 6.66''$ longitud $2^\circ 6' 59.84''$. El criterio para aceptar el valor promedio de la concentración de ^{222}Rn ha sido la existencia de al menos 5 casos de medida de descendientes de ^{222}Rn con estas características. Las concentraciones de descendientes son en general mayores para velocidad de viento bajo, lo cual es indicativo de que las situaciones de estabilidad favorecen la presencia de una mayor concentración de ^{222}Rn en el aire, tal y como se muestra en la figura 66, excepto para vientos procedentes del noroeste (direcciones entre 303.8 y 348.8 grados), en cuyo caso parece que las velocidades de viento altas favorecen el transporte de masas de aire con una mayor concentración de ^{222}Rn . En este caso son vientos procedentes de la sierra de Colserolla (figura 22). Tal y como se indica en el apartado 2.5.2, la sierra de Collserola es de constitución granítica. El granito contiene una elevada cantidad de ^{226}Ra y si se encuentra agrietado, la exhalación de ^{222}Rn aumenta. Esto podría justificar el hecho de que vientos bajos de esta procedencia podrían transportar más ^{222}Rn .

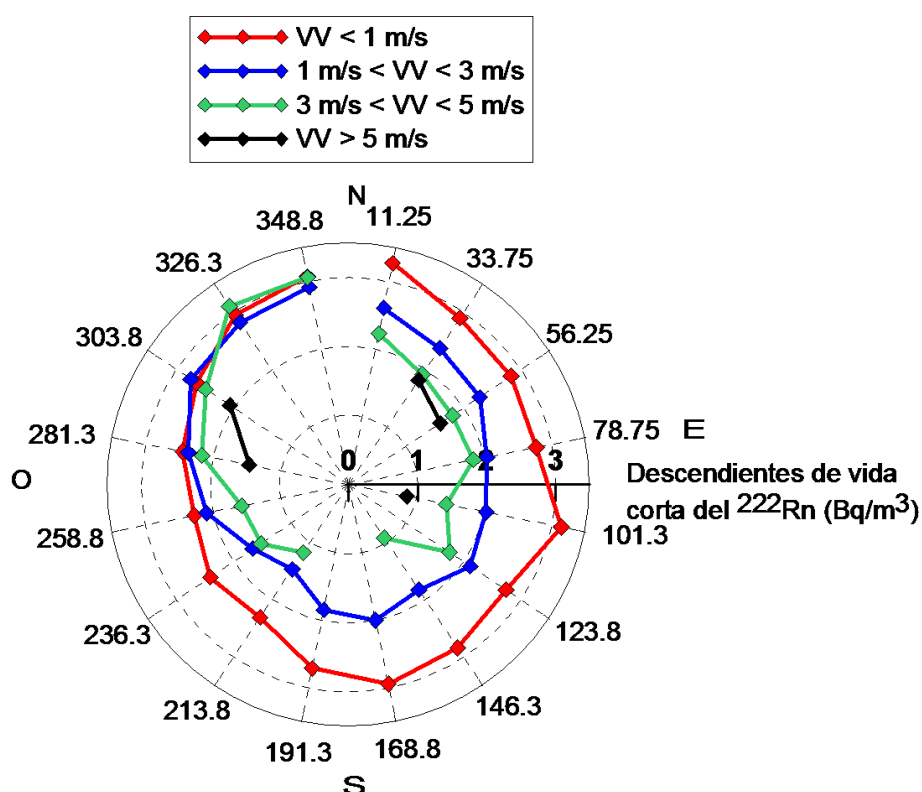


Figura 63: Concentración de descendientes de ^{222}Rn (Bq/m^3), para distintos rangos de velocidad y dirección de viento. Promedio del período comprendido entre 2005 y 2009

4.2.4.3 Correlación de los descendientes de ^{222}Rn con la lluvia

Durante los episodios de lluvia se ha observado un incremento de la tasa de dosis debido a la existencia de descendientes de ^{222}Rn en agua de lluvia, tal y como se puede apreciar en la figura 64, en la cual se observa la relación entre los mm de agua recogidos y la tasa de dosis (debida principalmente a los descendientes de ^{222}Rn) para los datos obtenidos cada 15 minutos mediante el monitor de tasa de dosis detallado en el apartado 3.3.1.2, durante un período escogido de 730 días, correspondientes a los años 2006 y 2007. En numerosos casos los picos de tasa de dosis coinciden con períodos en los que el pluviómetro de la estación radiometeorológica del Campus Nord del INTE ha registrado lluvias. Éste hecho ya fue observado en estudios anteriores realizados en Barcelona (Cortés, G. 2002), tal y como se muestra en la figura 28 del presente trabajo. Los descendientes de ^{222}Rn pasan a formar parte del agua de lluvia mediante el proceso de *washout* descrito en el apartado 3.6.2.

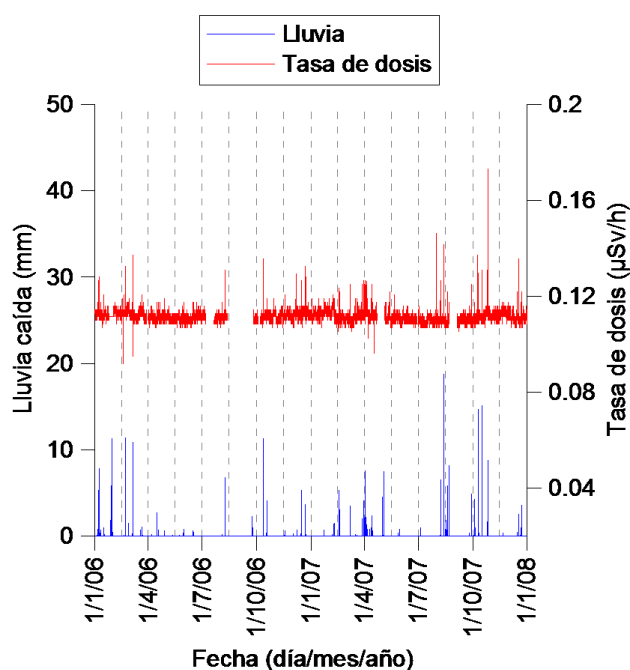


Figura 64: Datos obtenidos mediante el monitor de tasa de dosis y su comparativa con los datos de lluvia caída durante los años 2006 y 2007

Mediante el equipo SARAC descrito en el apartado 3.3.1.3, se midió la actividad de ^{214}Bi y ^{214}Pb en el agua de lluvia durante diversos episodios de lluvia ocurridos durante el año 1999 (Cortés et al., 2001). A través de la resolución de las ecuaciones de actividad de descendientes de vida corta del ^{222}Rn (apéndice A.5), se puede realizar una estimación del tiempo transcurrido desde la formación de la gota de lluvia en la nube hasta que ésta condensa, se precipita y llega hasta el suelo, donde es recogida por el sistema de medida de la actividad del agua de lluvia. En la tabla 8 se muestran los tiempos teóricos asociados a cada uno de los cocientes de actividad de ^{214}Bi y ^{214}Pb obtenidos en las muestras tomadas (ver figura 105). Las incertidumbres asociadas a estos tiempos han sido calculadas mediante la propagación de las incertidumbres de las concentraciones de los descendientes de ^{222}Rn . Este tiempo asociado es el tiempo transcurrido desde la formación

de la gota de lluvia en la nube hasta que esta condensa, se precipita y llega hasta el suelo, y podría estar relacionado con la intensidad de la lluvia, de manera que un tiempo asociado bajo podría corresponder con una intensidad de lluvia alta. Existe además cierta dependencia entre la concentración de descendientes de ^{222}Rn en el agua de lluvia y la procedencia de las nubes. Cuando las nubes provienen o se forman sobre el Mediterráneo, la concentración de descendientes es más baja que cuando las nubes se forman sobre el terreno o atraviesan grandes zonas no cubiertas por el mar (Cortés, 2001).

Tabla 8: Concentración de ^{214}Pb y ^{214}Bi en el agua de lluvia, ratio y tiempo asociado en horas

Fecha	Concentración ^{214}Pb (Bq/l)	Concentración ^{214}Bi (Bq/l)	Ratio $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$	Tiempo asociado (horas)
1-1-1999	194 ± 24	761 ± 88	3.92 ± 0.66	2.45 ± 0.42
13-3-1999	306 ± 34	856 ± 99	2.80 ± 0.45	1.07 ± 0.17
24-3-1999	51 ± 13	220 ± 40	4.31 ± 1.35	3.38 ± 1.06
26-3-1999	68 ± 19	295 ± 52	4.34 ± 1.43	3.42 ± 1.13
27-3-1999	96 ± 20	285 ± 55	2.97 ± 0.84	1.20 ± 0.34
15-4-1999	111 ± 17	406 ± 54	3.66 ± 0.74	2.05 ± 0.42
16-4-1999	148 ± 24	481 ± 71	3.25 ± 0.71	1.51 ± 0.33
17-4-1999	154 ± 25	477 ± 70	3.10 ± 0.68	1.33 ± 0.29
28-4-1999	231 ± 30	903 ± 106	3.91 ± 0.68	2.45 ± 0.43
13-9-1999	68 ± 13	282 ± 37	4.15 ± 0.96	2.94 ± 0.68
14-9-1999	110 ± 17	519 ± 63	4.72 ± 0.93	4.45 ± 0.87
14-9-1999	192 ± 25	806 ± 94	4.20 ± 0.73	3.08 ± 0.54
18-9-1999	282 ± 32	725 ± 85	2.57 ± 0.42	0.89 ± 0.15
20-10-1999	56 ± 12	252 ± 37	4.50 ± 1.17	1.32 ± 0.34

4.2.4.4 Correlación con la estabilidad atmosférica

En este apartado se ha realizado un estudio de la concentración de los descendientes de ^{222}Rn en función de la estabilidad meteorológica, para lo cual se han utilizado las clases de estabilidad de Pasquill (Pasquill, 1961). Según dicha clasificación existen 6 tipos de estabilidades, tal y como muestra la tabla 9. Las condiciones meteorológicas que definen las clases de estabilidad de Pasquill son las mostradas en la tabla 10.

Tabla 9: Clases de estabilidad según Pasquill

Clase de estabilidad	Definición
A	Condiciones extremadamente inestables
B	Condiciones moderadamente inestables
C	Condiciones ligeramente inestables
D	Condiciones neutras
E	Condiciones ligeramente estables
F	Condiciones estables

Tabla 10: Condiciones meteorológicas que definen las clases de estabilidad

Velocidad del viento (m/s)	Insolación diaria			Condiciones nocturnas	
	Fuerte	Moderado	Ligero	Ligeramente nuboso	Altamente nuboso
Inferior a 2	A	A-B	B	E	F
2-3	A-B	B	C	E	F
3-5	B	B-C	C	D	E
5-6	C	C-D	D	D	D
Superior a 6	C	D	D	D	D

En la figura 65 se muestra el número de casos durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009 en Barcelona ocurridos para cada una de las diferentes clases de estabilidad. Puede observarse que son predominantes las situaciones neutras. Tal y como se ha indicado anteriormente, tanto estos valores como los de altura de capa de mezcla han sido obtenidos a través de la web del ARL, que ofrece dichos datos para intervalos de 3 horas. En la figura 66 se observa la correlación entre la estabilidad meteorológica y los descendientes de ^{222}Rn , siendo la concentración de éstos mayor para situaciones más estables. Una vez más esto tiene relación con la altura de la capa de mezcla tal y como se observa en la gráfica, puesto que para situaciones más estables la altura de la capa de mezcla disminuye provocando que la concentración de ^{222}Rn aumente. Las barras de incertidumbre en la figura 66 corresponden a la desviación típica del valor promedio de la concentración de descendientes de ^{222}Rn y la altura de la capa de mezcla promediados en función del tipo de estabilidad.

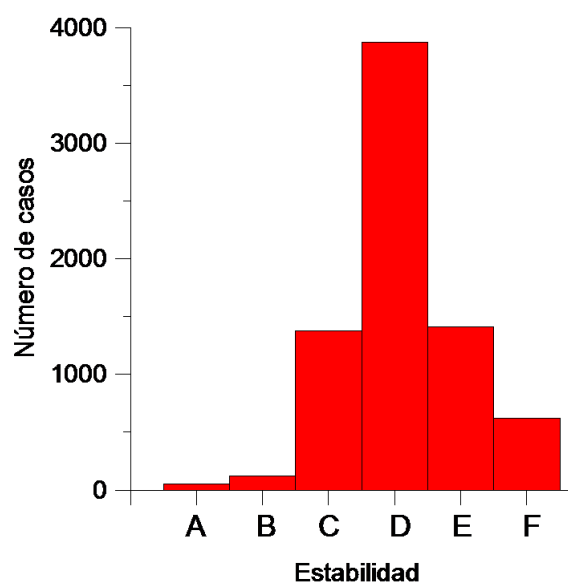


Figura 65: Número de casos para cada una de las situaciones de estabilidad durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009

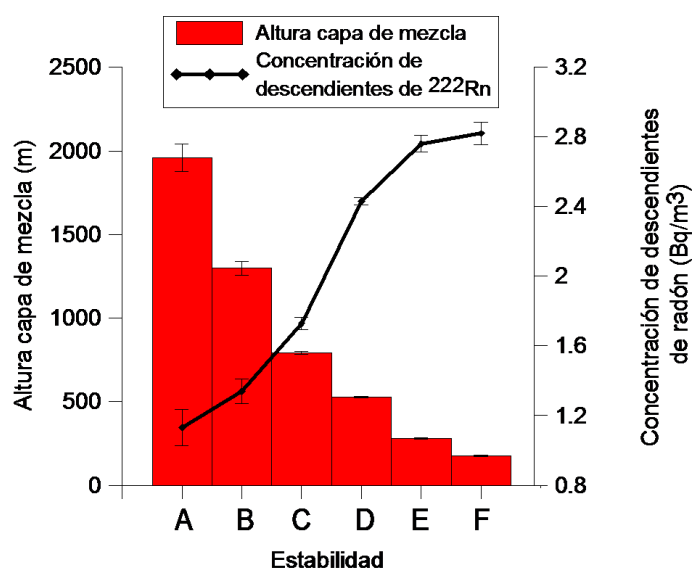


Figura 66: Altura de la capa de mezcla y concentración de descendientes de ^{222}Rn para cada una de las situaciones de estabilidad durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009

4.3 ^7Be

En la figura 67 se puede observar la tendencia general que sigue mensualmente la concentración de ^7Be en Barcelona junto con la radiación solar durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009. Las barras rojas indican la concentración ^7Be mientras que la línea negra representa la evolución mensual de radiación solar. Las barras de incertidumbre corresponden a la desviación típica del valor promedio de la concentración de ^7Be y radiación solar promediados mensualmente. Los meses cálidos (junio, julio, agosto y septiembre) coinciden con las mayores concentraciones de ^7Be , porque tal y como se indica el apartado 2.2.1, durante estos meses el calor solar de la superficie terrestre provoca el calentamiento del aire al estar en contacto con la superficie. Este aire caliente tiende a ascender, transportando aire de la superficie terrestre hacia arriba y aire frío de las capas altas y con elevada concentración de ^7Be hacia abajo.

En el apartado 2.2.1 se señala que existe una relación inversa entre la concentración de ^7Be y el número de manchas solares. En el presente trabajo, los 9 años en los que se disponen de datos de concentración de ^7Be se corresponde con un período de descenso en el número de manchas solares, tal y como se puede observar en la figura 68.

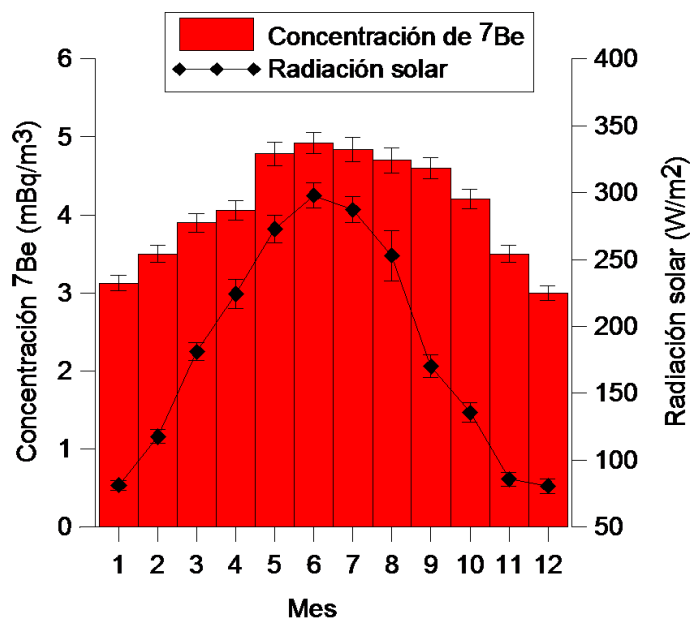


Figura 67: Concentración ⁷Be y radiación solar mensual durante el período comprendido entre los años 2005 y 2009

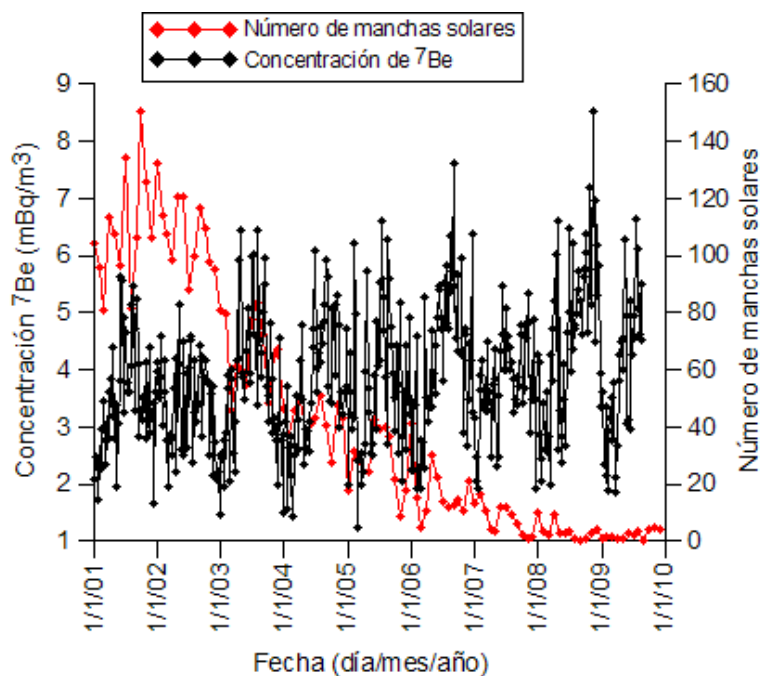


Figura 68: Concentración de ⁷Be en Barcelona durante los años 2001-2009 (equipo alto volúmen) y número de manchas solares

La evolución anual del ^7Be se puede confirmar mediante el periodograma realizado para las muestras semanales de concentración de este radionucleido obtenidas mediante el equipo de alto volumen. La frecuencia observada en la figura 69 corresponde a períodos de aproximadamente 52 semanas (1 año).

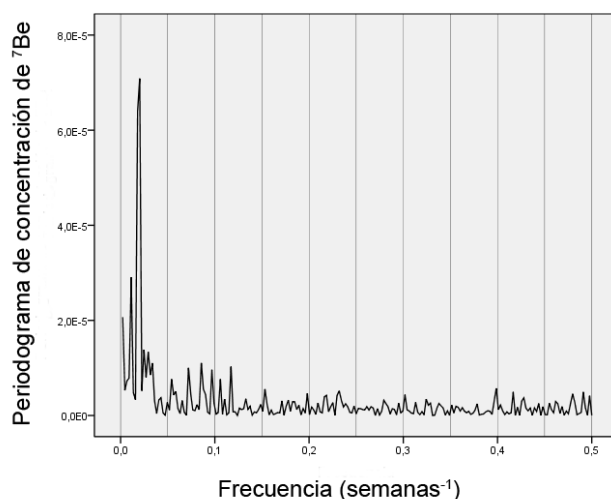


Figura 69: Periodograma del ^7Be por semana durante el período comprendido entre 2001 y 2009

En la figura 70 se muestra el ajuste logarítmico-normal correspondiente a la concentración de actividad de ^7Be y su frecuencia. Dicho ajuste muestra un máximo de valor 3.74 mBq/m^3 con una desviación geométrica estándar de valor 1.40.

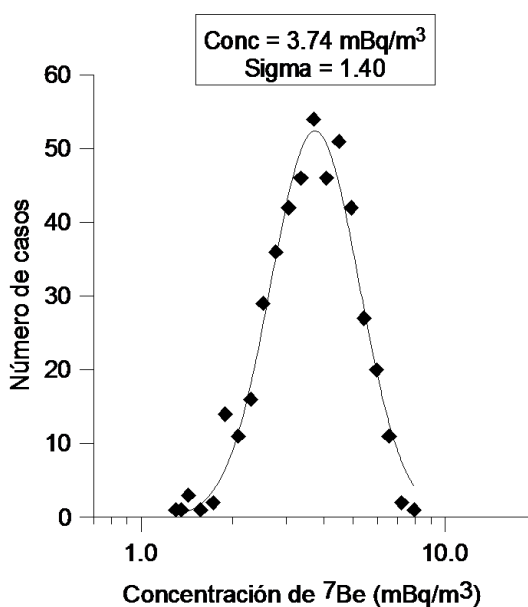


Figura 70: Ajuste logarítmico normal por frecuencias de la concentración de ^7Be

4.4 ^{40}K

El ^{40}K es un importante radionucleido con una gran relevancia como aerosol radiactivo por encontrarse en las capas superficiales del suelo. La resuspensión es la mayor fuente de este radionucleido en la atmósfera puesto que puede ser fácilmente transportado junto con el resto de material resuspendido, encontrándose así muy presente en la naturaleza (Grabowska et al., 2008; Ioannidou and Papastefanou, 2006; Lee et al., 2002). Algunas fuentes artificiales como por ejemplo los fuegos artificiales pueden contribuir al incremento de la cantidad de ^{40}K natural en el medio ambiente. En la figura 71 se puede apreciar la evolución de la concentración de actividad de ^{40}K durante el período comprendido entre los años 2001 y 2009.

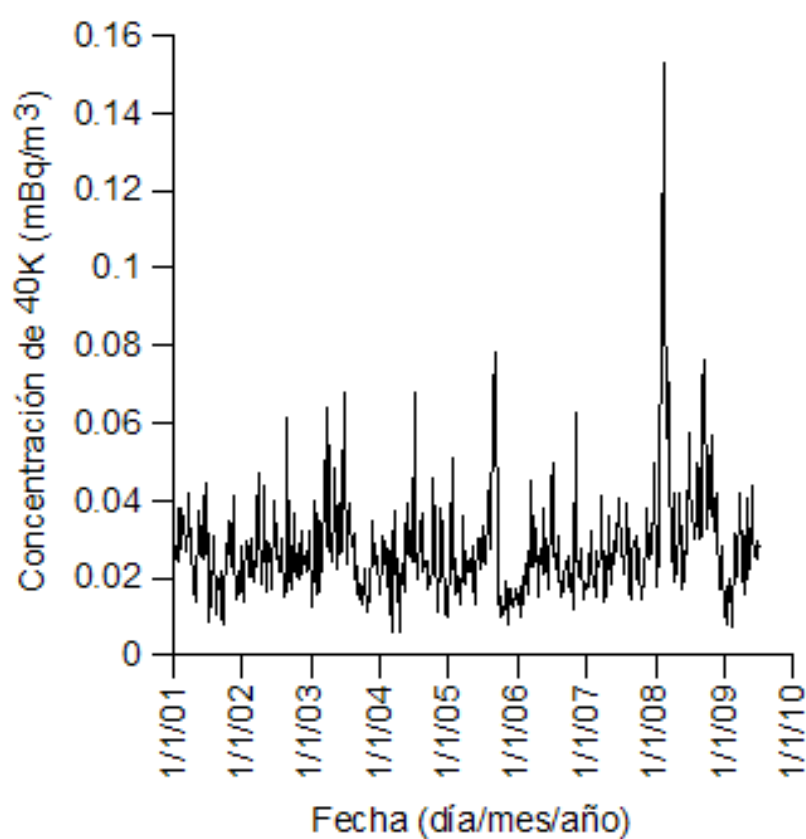


Figura 71: Evolución temporal de la concentración de actividad de ^{40}K durante el período comprendido entre los años 2001 y 2009

El pico más alto desde 2001 se produce en el año 2008, durante el mes de febrero. Este pico coincide con las obras cercanas del aparcamiento en la Plaza de Bederrida, situado a unos 100 metros de las instalaciones del INTE. Durante estos días hubo una cantidad de polvo mucho mayor de la habitual, con circulación continua de camiones en las cercanías del edificio donde se encuentra el equipo de alto volumen del INTE. Durante este mes se recogió un promedio semanal de 8.78 gramos de partículas atmosféricas, mientras que durante los 9 años, el promedio es de 4.48 gramos de peso. El segundo pico más alto ocurre durante el mes de agosto de 2005, fecha durante la cual se procedió al desmantelamiento del reactor nuclear experimental ARGOS de la UPC, que se encontraba junto

a la estación de muestreo radiológico del Campus Sud, y donde actualmente se encuentra ubicado el edificio C'. Durante este mes se recogió un promedio de 7.80 gramos de partículas atmosféricas.

Por lo tanto, parece conveniente realizar un análisis de actividad específica de ^{40}K por unidad de masa. En la figura 72 se puede observar la gráfica anterior normalizada con el número de gramos de polvo recogidos en el filtro. El pico indicado durante el mes de febrero de 2008 tiende a igualarse con el resto de picos existentes durante ese año. De los 4 valores más altos que se aprecian en la figura, tres de ellos (2003, 2004 y 2007) coinciden con la festividad de San Juan y uno (2008) con un espectáculo de pirotecnia en el estadio Nou Camp, próximo a las instalaciones del INTE. El promedio de actividad de ^{40}K por unidad de gramo muestra un valor de 0.45 Bq/g, con una desviación típica de 0.11 Bq/g. Este valor se encuentra en concordancia con otros encontrados en la literatura, de valores 0.33 Bq/g (Quindós et al., 2003) y 0.25 Bq/g (Llauradó et al., 2001) para ^{40}K en muestras de suelo en diferentes zonas de Cataluña.

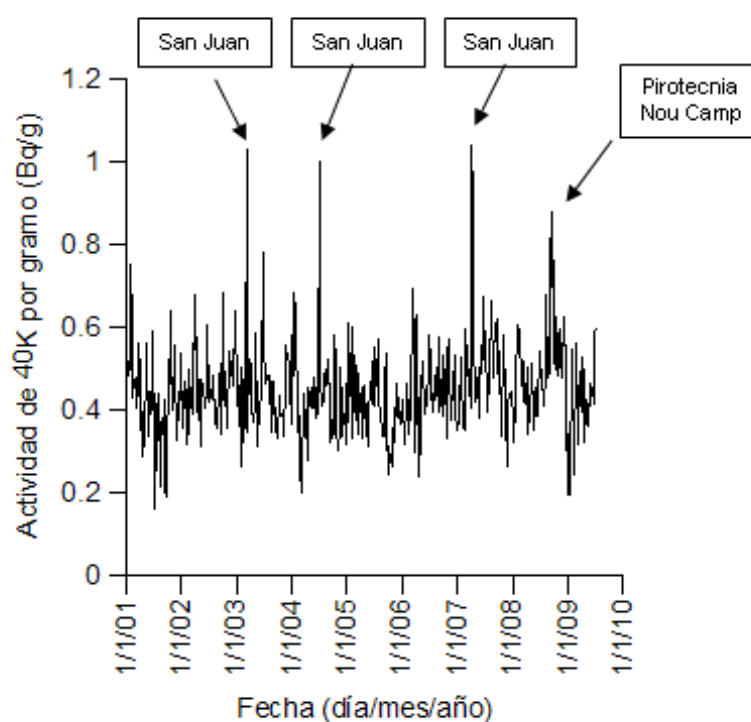


Figura 72: Evolución temporal mensual de la concentración de actividad ^{40}K por unidad de masa durante el período comprendido entre los años 2001 y 2009

En la figura 73 se puede observar el promedio mensual de la evolución de la concentración de ^{40}K durante los 9 años en que se dispone de datos. Las barras de incertidumbre corresponden a la desviación típica del valor de la concentración de ^{40}K promediado mensualmente. La evolución temporal no muestra comportamientos cíclicos claros, manteniéndose en un rango entre 0.40 y 0.55 Bq/g. Sin embargo, se ha incluido una barra correspondiente al promedio de las semanas correspondientes a la festividad de San Juan, que tiene lugar durante el 23 de junio. Como puede

apreciarse, el promedio de concentración de actividad de ^{40}K durante esta semana supera con creces la concentración típica de ^{40}K a lo largo del resto del año. Parece por tanto que los aerosoles generados durante la pirotecnia de San Juan tienen una relevancia significativa en la concentración detectada de este radionucleido.

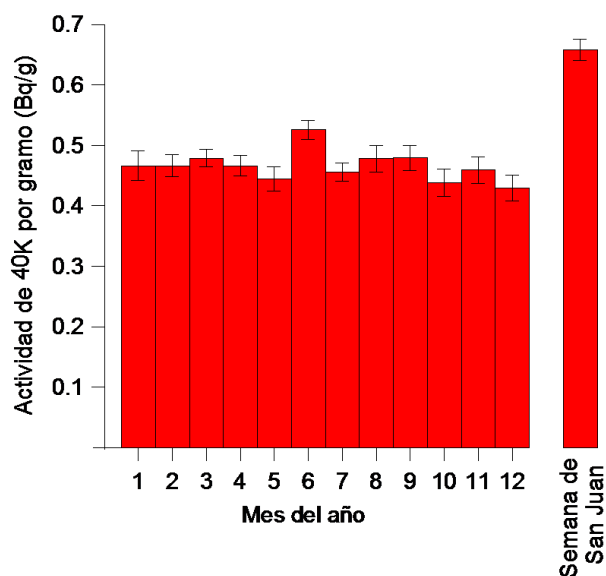


Figura 73: Evolución temporal del ^{40}K promediado mensualmente durante el período de tiempo comprendido entre los años 2001 y 2009. Comparativa con la semana de San Juan

El periodograma del ^{40}K muestra que no existen ciclos periódicos de evolución de concentración de este radioisotopo (figura 74).

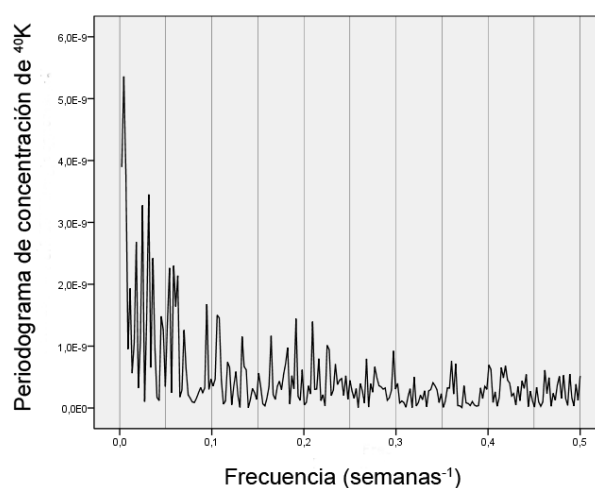


Figura 74: Periodograma del ^{40}K por semana durante el período comprendido entre 2001 y 2009

En la figura 75 se muestra el ajuste logarítmico-normal realizado para las muestras semanales de concentración de actividad de ^{40}K y su correspondiente frecuencia. Dicho ajuste muestra una distribución con un máximo de valor $2.50 \cdot 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$, con una desviación estándar geométrica asociada de valor 1.45.

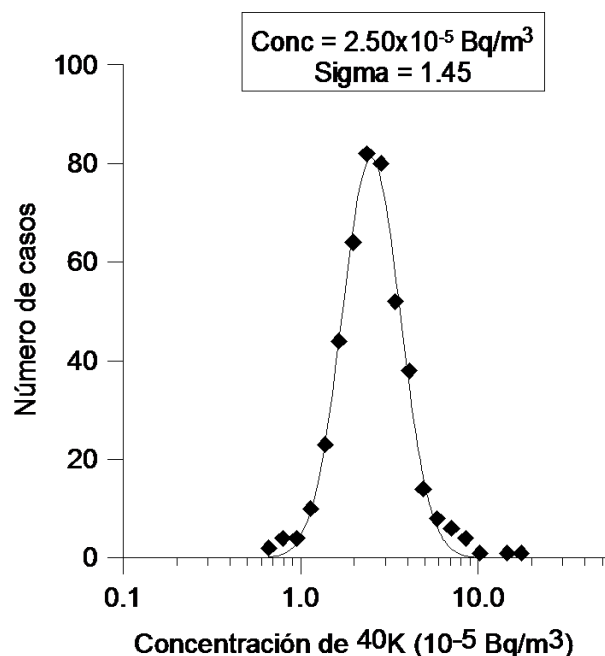


Figura 75: Ajuste logarítmico normal por frecuencias de la concentración de ^{40}K

4.5 ^{210}Pb

La concentración de ^{210}Pb presenta una alta variabilidad temporal, tal y como se puede apreciar en la figura 76 en la que se muestra la evolución entre los años 2001 y 2009 como resultado de la toma de muestras realizada mediante el equipo de alto volúmen durante estos años. En febrero de 2008, durante las obras del aparcamiento en la Plaza de la Bederrida, no se observa un incremento de ^{210}Pb . Esto parece descartar la hipótesis de que las detecciones de altas concentraciones de ^{210}Pb estén relacionadas con los fenómenos de resuspensión.

Se ha realizado un promedio mensual de la concentración de ^{210}Pb para comprobar la evolución anual de dicho radionucleido. Los resultados se muestran en la figura 77. La concentración de ^{210}Pb tiende a ser superior durante los meses cálidos. Entre junio y octubre se observan las concentraciones más altas, lo que se corresponde con otros trabajos similares realizados para otras ciudades tales como Chilton (Inglaterra) (Daish et al., 2005), o Jungfraujoeh (Suiza) (Gaggeler and Seibert, 1995). La evolución temporal mensual del ^{210}Pb es similar a la del ^7Be (figura 67). El motivo puede ser la existencia de ^{210}Pb en la alta troposfera, tal y como se ha indicado en el apartado 2.2.2 (figura 14). Además, se observa que la concentración de ^{210}Pb tiene una tendencia distinta a la que muestra la cantidad de polvo recogido en el filtro, con lo cual se puede descartar que la detección de este radioisótopo esté relacionado con fenómenos de resuspensión.

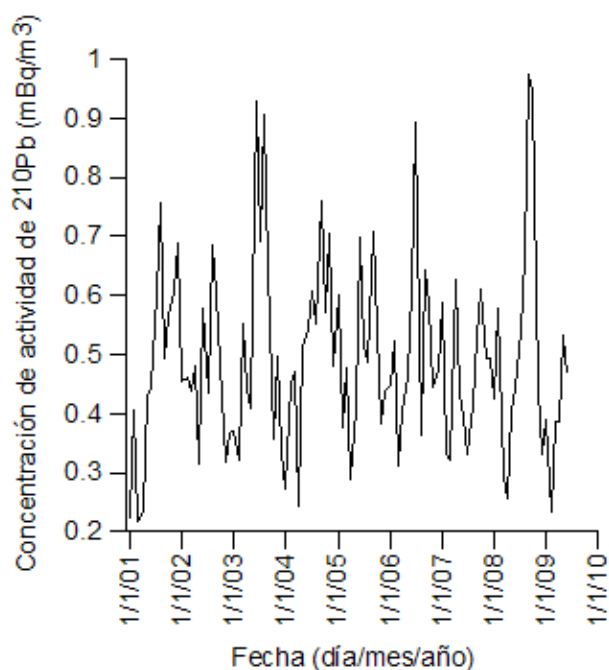


Figura 76: Evolución temporal de la concentración de actividad de ^{210}Pb entre 2001 y 2009 en Barcelona

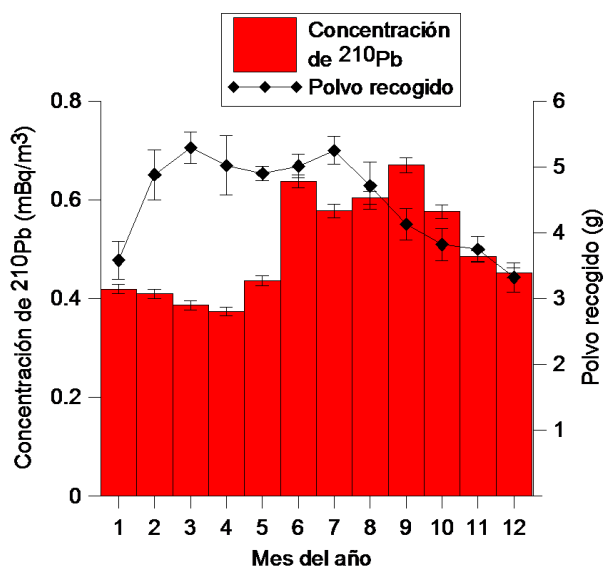


Figura 77: Concentración de ^{210}Pb y cantidad de polvo recogido en el filtro promediado por meses entre 2001 y 2009 en Barcelona

En la gráfica 78 se muestra la evolución mensual del ^{210}Pb en Bq/g, que a diferencia del ^{40}K (figura 73) muestra una variación cíclica, con un incremento de actividad durante los meses cálidos, debido al transporte vertical de masas de aire cargado de ^{210}Pb desde las capas altas de la atmósfera. Tanto en la figura 77 como en la 78, las barras de incertidumbre corresponden a la desviación típica del valor medio de las diferentes variables promediadas mensualmente.

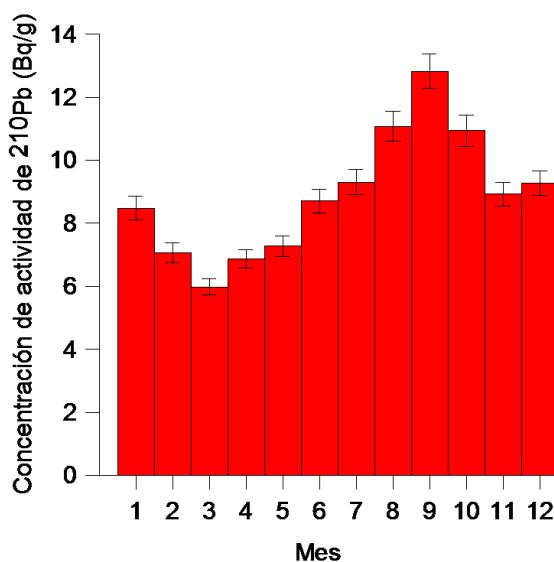


Figura 78: Evolución temporal de la concentración de ^{210}Pb promediado por meses entre 2001 y 2009 en Barcelona

La evolución anual del ^{210}Pb corresponde a ciclos periódicos de 52 semanas (1 año), tal y como se puede observar en el análisis de frecuencias de la figura 79.

En la figura 80 se muestra el ajuste logarítmico-normal correspondiente a la concentración de actividad de ^{210}Pb y su frecuencia. El ajuste muestra un máximo de valor 0.45 mBq/m^3 con una desviación geométrica estándar de valor 0.59.

4.6 Estimación del origen del ^{137}Cs

Para evaluar la procedencia del ^{137}Cs detectado en 54 episodios entre 2001 y 2009 en la ciudad de Barcelona, inicialmente se plantearon dos hipótesis: la primera es que su origen estuviera relacionado con la resuspensión local y la segunda que el origen se encontrara en la resuspensión de partículas procedentes de fuentes más lejanas pero con una actividad específica elevada. Una resuspensión con actividad baja pero con una fuente lo suficientemente cercana al equipo de muestreo puede dar lugar a valores significativos de ^{137}Cs . Igualmente, resuspensiones procedentes de fuentes más lejanas pero con más altos niveles de actividad pueden dar lugar también a valores importantes de ^{137}Cs .

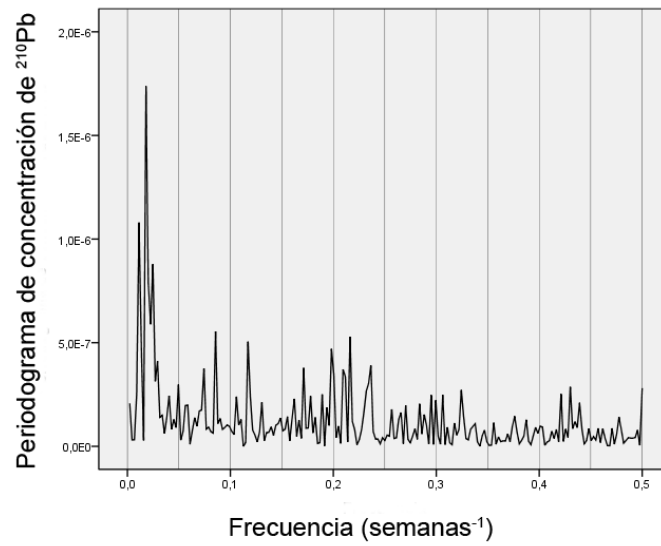


Figura 79: Periodograma del ^{210}Pb por semana durante el período comprendido entre 2001 y 2009

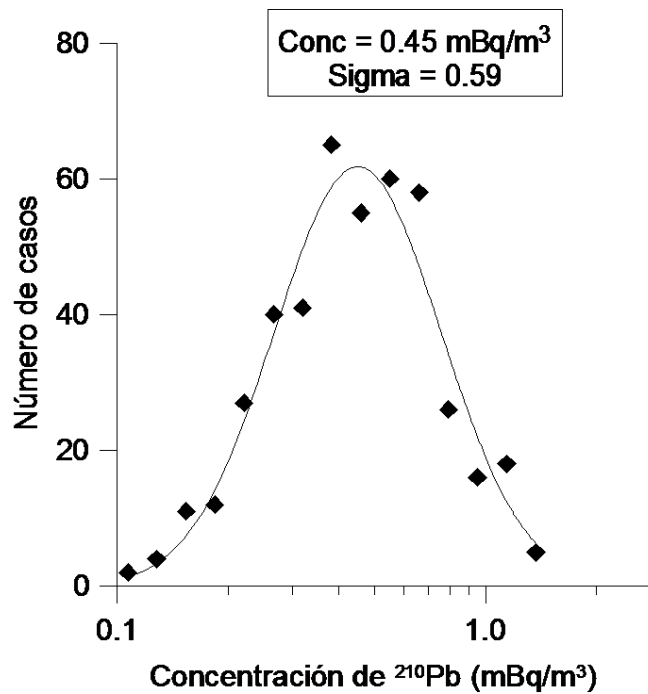


Figura 80: Ajuste logarítmico normal por frecuencias de la concentración de ^{210}Pb

Se han comparado los episodios de detección de ^{137}Cs y la evolución de ^{40}K durante los 9 años en que se disponen de datos obtenidos mediante el equipo de alto volumen, con el objetivo de evaluar la posibilidad de que el origen fuera la resuspensión local. Como muestra, en la figura 81 se representa la evolución de ^{40}K (línea roja) frente a los episodios de detección de ^{137}Cs (barras verdes) durante el año 2004. Los episodios de detección de ^{137}Cs no presentan una relación evidente con los picos en la concentración de ^{40}K . Otro hecho significativo que descarta la relación entre resuspensión local y la detección de ^{137}Cs es el hecho de que no existió detección de ^{137}Cs en durante las obras del aparcamiento en la Plaza de Bederrida, cercano a la ubicación del equipo muestreador en febrero de 2008. Tal y como se ha indicado en el apartado 4.4, estas obras coinciden con el mayor pico de detección de ^{40}K entre 2001 y 2009 (figura 71).

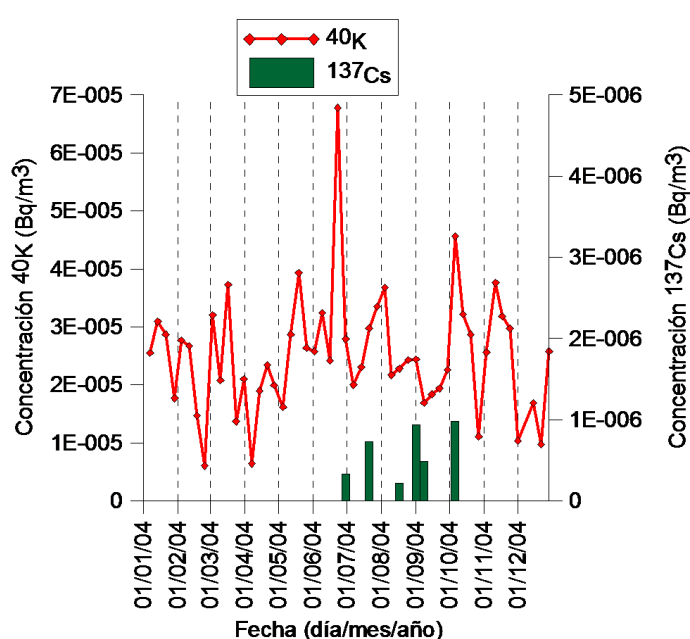


Figura 81: Evolución temporal de la concentración de actividad de ^{40}K y ^{137}Cs durante el año 2004

El valor promedio de actividad específica de ^{137}Cs por unidad de masa es de 9.10 Bq/kg, con una desviación típica de 4.30 Bq/kg. Este valor promedio de actividad está en concordancia con el presentado en otros trabajos. El análisis realizado en 2004 en el suelo de diversas localidades francesas presenta un valor promedio del orden de 9 Bq/kg (Roussel-Debel et al., 2007). Tal y como se muestra en la figura 21, en la mayor parte de Francia la cantidad de ^{137}Cs depositado en el suelo como consecuencia del accidente nuclear de Chernobyl fue baja, al igual que en Cataluña. Por este motivo sus valores de actividad de ^{137}Cs en el suelo son similares.

En la figura 82 se muestra la actividad específica del ^{40}K por unidad de masa frente a la del ^{137}Cs en los 54 episodios de detección de ^{137}Cs durante el período comprendido entre enero de 2001 y julio de 2009. Los valores de ^{40}K son más constantes que los de ^{137}Cs , que presentan una mayor variación. La desviación típica del ^{40}K supone un 24% de su valor promedio, mientras que la desviación típica de la concentración de ^{137}Cs supone un 47% de su promedio. Este hecho indica la más alta heterogeneidad de los suelos en cuanto a la concentración de ^{137}Cs en relación al ^{40}K .

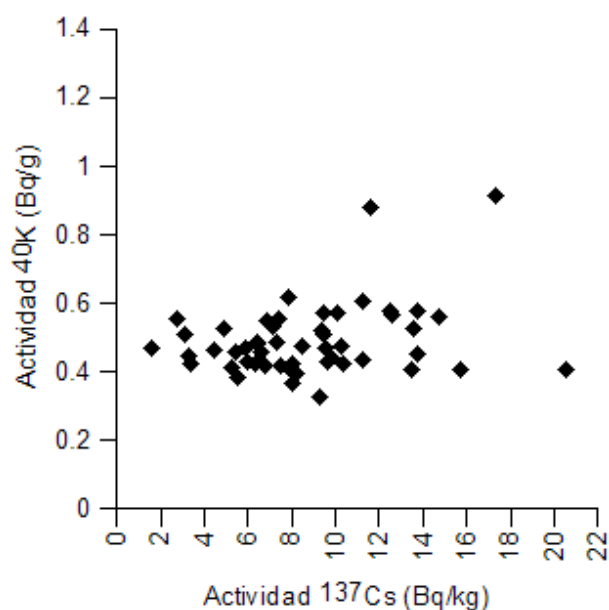


Figura 82: Actividad de ^{40}K por gramo frente a la actividad de ^{137}Cs por kilogramo durante los 54 episodios de detección de ^{137}Cs

Tras observar que en numerosas ocasiones las intrusiones de polvo sahariano provocaban la detección de ^{137}Cs , se procedió a un estudio más riguroso acerca de la relación entre los episodios de detección de ^{137}Cs y los episodios de masas de aire procedente del Norte de África. Este trabajo se basó en la correlación y estudio estadístico de las semanas con detección de ^{137}Cs y los días en los que las masas de aire procedían del Norte de África, evaluando así la incidencia de las intrusiones de polvo sahariano en Barcelona y su relación con la detección de ^{137}Cs . Por tanto los datos de ^{137}Cs obtenidos mediante el equipo de alto volumen del INTE se combinaron con los datos de procedencia de masas de aire diarios cedidos por el Instituto de Ciencias de la Tierra Jaume Almera, perteneciente al Consejo Superior de Investigaciones Científicas (CSIC) en Barcelona. Estos datos fueron obtenidos mediante estudios de retrotrayectorias a través del modelo de dispersión de partículas en la atmósfera HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory model).

El estudio realizado muestra que durante los 3108 días totales de muestreo, 1415 han tenido masas de aire procedentes del océano atlántico, 391 días masas de aire procedentes del Norte de África, 141 días masas de aire procedente del mediterráneo, 219 masas de aire de centro europa y 942 tienen vientos locales.

Por otro lado, ha habido un total de 54 episodios semanales de detección de ^{137}Cs por encima del límite inferior de detección entre enero de 2001 y julio de 2009. Los valores del límite inferior presentan valores que oscilan entre $2 \cdot 10^{-7}$ y $6 \cdot 10^{-7}$ Bq/m³. Para evaluar la importancia del origen de las masas de aires en estos episodios, se ha calculado el ratio entre el número de días en episodios de detección de ^{137}Cs y el número de días totales de muestreo, para los diferentes orígenes de las masas de aire. De esta manera tendremos una idea numérica de la relación entre el origen de las masas de aire y su incidencia en la detección de ^{137}Cs . Como ejemplo, durante los

3108 días totales de muestreo entre enero de 2001 y julio de 2009, ha habido 391 días con masas de aire procedente del Norte de África. Durante los 54 episodios de detección de ^{137}Cs , ha habido 143 días con masas de aire procedente del Norte de África. Por tanto el ratio será en este caso $143/391 = 0.366$. Se ha realizado este mismo cálculo para masas de aire procedentes del océano Atlántico, mar Mediterráneo, Centroeuropa y vientos locales. Los resultados se muestran en la tabla 11, donde se observa que el mayor ratio es el correspondientes a las masas de aire procedentes del Norte de África.

Tabla 11: Ratio para cálculo de la incidencia de las masas de aire según su procedencia en la detección de ^{137}Cs

Origen de las masas de aire	Días totales	Días en episodios de detección de ^{137}Cs	Ratio entre días en episodios de detección de ^{137}Cs y días totales
Norte de África	391	143	0.366
Atlántico	1415	119	0.084
Local	942	127	0.135
Mediterráneo	141	18	0.128
Centroeuropa	219	15	0.068

Para valorar la incidencia de las masas de aire según su procedencia en la detección de ^{137}Cs , se ha realizado una clasificación según el número de días por muestra con masas de aire procedente del norte de África (NAF) (tabla 12), vientos regionales, masas de aire procedentes de Centroeuropa, mar Mediterráneo y océano Atlántico. Por ejemplo, entre 2001 y 2009, ha habido tan solo 2 muestras con 7 días con masas de aire procedentes de África. Ambas semanas han resultado con detección de ^{137}Cs . Han existido 4 muestras con 6 días con masas de aire procedentes de África, y las 4 han tenido como resultado detección de ^{137}Cs . Los resultados se encuentran expuestos en la tabla 12. De acuerdo con la figura 83 y la tabla 12, se puede concluir que existe una elevada probabilidad de que el origen de un gran número de episodios de detección de ^{137}Cs sea el desierto del Sáhara. Para el resto de procedencias de masas de aire, los resultados se muestran en las tablas 13, 14, 15, 16 y sus respectivas figuras 85, 14, 87 y 88.

Tabla 12: Clasificación según el número de días por muestra con masas de aire procedentes del norte de África

Nº días con masas de aire procedentes del norte de África	Nº de semanas con detección de ^{137}Cs	Nº de semanas sin detección de ^{137}Cs	Probabilidad de detección de ^{137}Cs (%)	Promedio límite inferior de detección (Bq/m^3)	Peso promedio por semana (g)
7	2	0	100	$5.49 \cdot 10^{-7}$	5.80
6	4	0	100	$4.90 \cdot 10^{-7}$	5.33
5	5	11	31.25	$4.48 \cdot 10^{-7}$	4.07
4	7	12	36.84	$3.64 \cdot 10^{-7}$	4.95
3	9	21	30.00	$4.63 \cdot 10^{-7}$	4.83
2	12	40	23.08	$3.86 \cdot 10^{-7}$	4.87
1	5	53	8.62	$2.89 \cdot 10^{-7}$	4.76
0	10	254	3.79	$4.26 \cdot 10^{-7}$	4.27

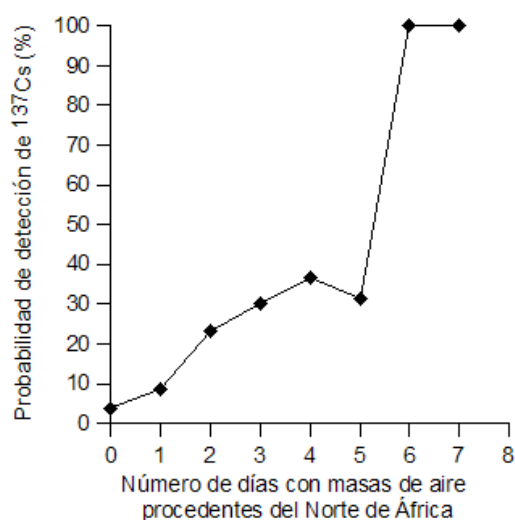


Figura 83: Probabilidad de detección de ^{137}Cs según el número de días con masas de aire procedentes de África por muestra

En la figura 84 se aprecia la relación entre la probabilidad de encontrar ^{137}Cs y el polvo recogido en el filtro. Dicha figura es una comparativa entre la probabilidad de detección de ^{137}Cs según el número de días con masas de aire procedentes de África por muestra y el peso en gramos de polvo recogidos en la muestra:

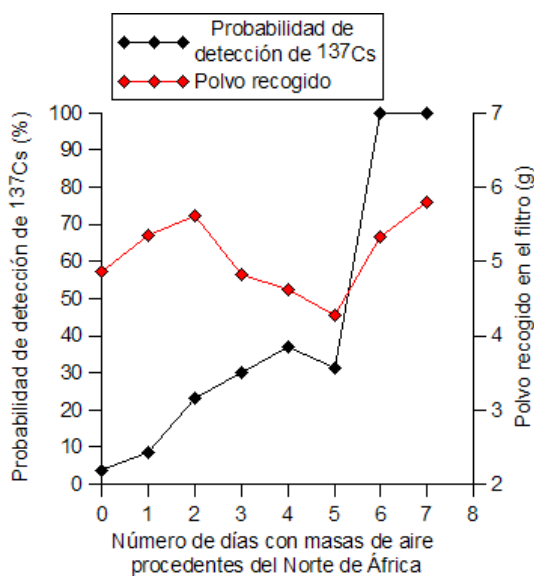


Figura 84: Probabilidad de detección de ^{137}Cs y peso en polvo recogido

Tabla 13: Clasificación según el número de días por muestra con masas de aire de origen regional

Nº días con masas de aire de origen regional	Nº de semanas con detección de ^{137}Cs	Nº de semanas sin detección de ^{137}Cs	Probabilidad de detección de ^{137}Cs (%)	Peso promedio por semana (g)
8	1	14	6.67	4.15
7	0	13	0.00	4.46
6	4	16	20.00	4.70
5	5	36	12.20	4.72
4	8	35	18.61	5.04
3	5	51	8.93	4.75
2	9	55	14.06	4.43
1	7	50	12.28	4.34
0	15	121	11.03	4.20

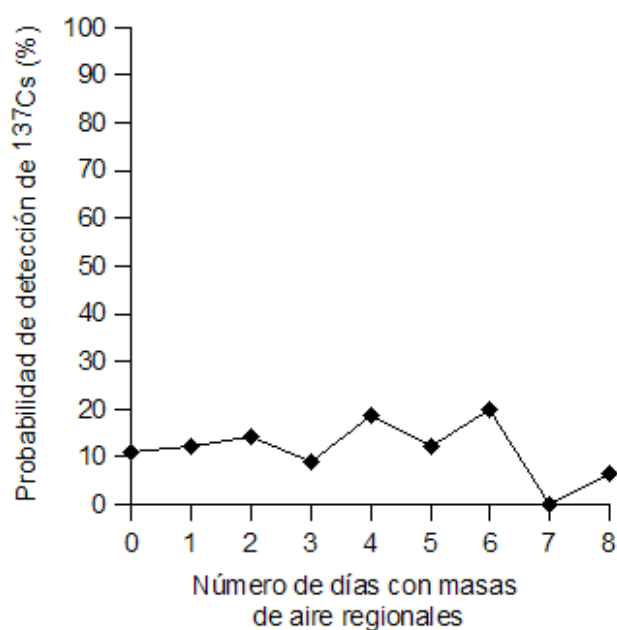


Figura 85: Probabilidad de detección de ^{137}Cs según el número de días con masas de aire regionales por muestra

Tabla 14: Clasificación según el número de días por muestra con masas de aire procedentes de Centroeuropa.

Nº días con masas de aire procedentes de Centroeuropa	Nº de semanas con detección de ^{137}Cs	Nº de semanas sin detección de ^{137}Cs	Probabilidad de detección de ^{137}Cs (%)	Peso promedio por semana (g)
8	0	1	0.00	2.90
7	0	0	-	-
6	0	2	0.00	4.40
5	1	8	11.11	3.57
4	0	11	0.00	4.60
3	2	12	14.28	3.96
2	0	33	0.00	4.10
1	5	34	12.82	4.45
0	46	290	13.69	4.56

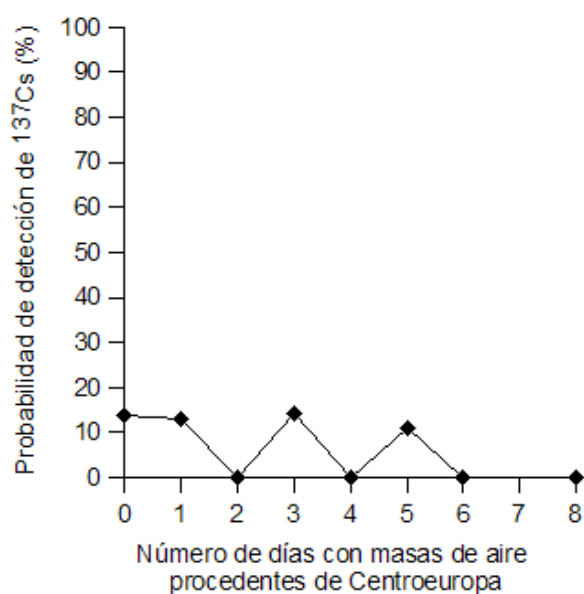
Figura 86: Probabilidad de detección de ^{137}Cs según el número de días con masas de aire procedentes de Centroeuropa por muestra

Tabla 15: Clasificación según el número de días por muestra con masas de aire procedentes del Mediterráneo.

Nº días con masas de aire procedentes del Mediterráneo	Nº de semanas con detección de ^{137}Cs	Nº de semanas sin detección de ^{137}Cs	Probabilidad de detección de ^{137}Cs (%)	Peso promedio por semana (g)
7	0	1	0.00	2.00
6	0	1	0.00	3.8
5	0	3	0.00	5.1
4	1	4	0.00	3.06
3	1	4	20.00	5.70
2	4	27	12.90	4.37
1	2	32	8.57	3.92
0	46	319	12.64	4.55

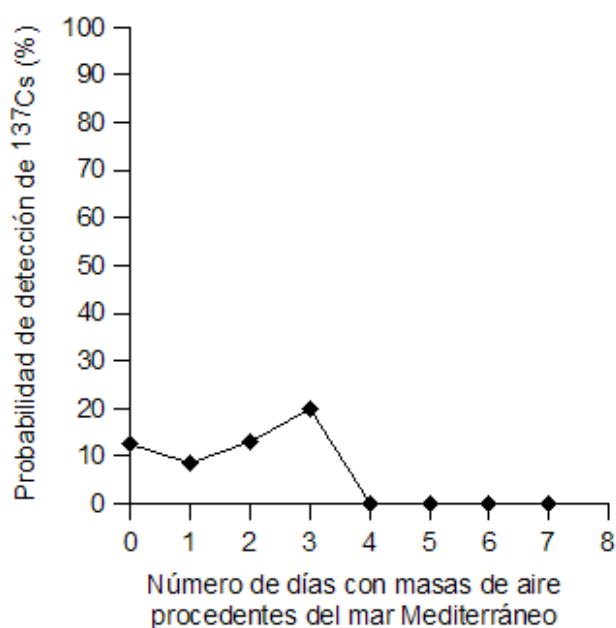
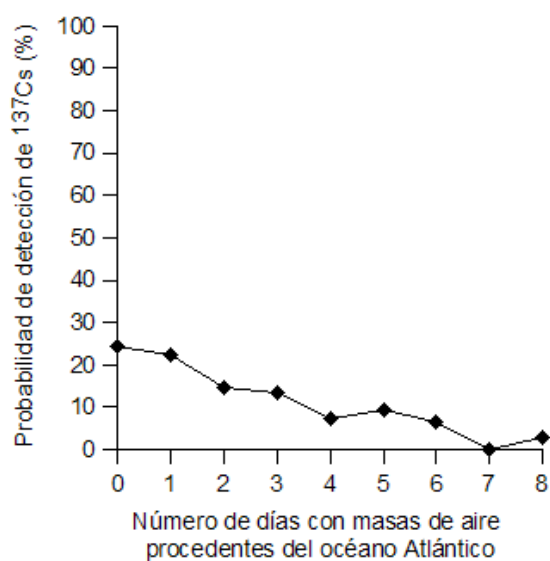


Figura 87: Probabilidad de detección de ^{137}Cs según el número de días masas de aire procedentes procedentes del Mediterráneo por muestra

Tabla 16: Clasificación según el número de días por muestra con masas de aire procedentes del océano Atlántico.

Nº días con masas de aire procedentes del Atlántico	Nº de semanas con detección de ^{137}Cs	Nº de semanas sin detección de ^{137}Cs	Probabilidad de detección de ^{137}Cs (%)	Peso promedio por semana (g)
8	1	37	2.78	4.21
7	0	29	0.00	4.70
6	3	43	6.52	4.28
5	6	48	9.43	4.70
4	3	51	7.27	4.59
3	8	45	13.46	4.37
2	9	52	14.75	4.41
1	11	39	22.44	4.58
0	13	44	24.56	4.53

Figura 88: Probabilidad de detección de ^{137}Cs según el número de días con masas de aire procedentes del Atlántico por muestra

Tras observar estas figuras, se concluye que tan solo existe una tendencia clara a la detección de ^{137}Cs cuando las masas de aire proceden del norte de África. Por ello, el valor medido de la actividad de ^{137}Cs en cada muestra dependerá del número de días en los que el viento procedente del norte de África. Esto podría explicar la elevada dispersión en el valor promedio de actividad de ^{137}Cs . La figura 85 muestra que los fenómenos de resuspensión locales no parecen tener especial relevancia en la detección de ^{137}Cs en Barcelona. Para masas de aire procedentes del océano Atlántico o del mar Mediterráneo, la probabilidad de detección de ^{137}Cs disminuye. La figura 86 parece descartar la probabilidad de que exista un aporte relevante de partículas de ^{137}Cs por parte de las masas de aire procedentes de Centroeuropa, debido principalmente al escaso número de días cuyas masas de aire tienen esta procedencia.

Se ha realizado un estudio relativo a la actividad de ^{137}Cs por unidad de masa según el origen de las masas de aire. Tal y como se observa en la tabla 17, en el caso en que las masas de aire tienen su origen en el norte de África, la actividad media obtenida fue de 9.82 ± 1.05 Bq/kg. En el caso en que las masas de aire tienen origen local, la actividad es de 7.81 ± 0.62 Bq/kg. En caso de masas de aire con origen atlántico, la actividad de ^{137}Cs es algo más alto dado que en este caso la masa de aire atravesaría la península ibérica arrastrando partículas desde puntos lejanos al punto donde se está realizando el muestreo. Respecto a las detecciones de ^{137}Cs en episodios con masas de aire procedentes de centroeuropa y el mediterráneo, existe un número de casos muy bajo y por tanto su incertidumbre presenta un valor demasiado elevado. La elevada actividad de ^{137}Cs para masas de vientos procedentes de Centroeuropa, de valor 11.25 ± 3.36 Bq/kg, indica una alta deposición de dicho radionucleido en suelo centroeuropeo, como consecuencia del accidente nuclear de Chernobyl. Este valor hubiera sido considerablemente mayor si se hubieran producido episodios en los cuales todos los días la procedencia de las masas de aire hubieran sido del centro de Europa. Como este hecho no ha sucedido, dicha actividad específica queda promediada con las menores actividades de otras procedencias.

Tabla 17: Actividad de ^{137}Cs por gramo según el origen de las masas de aire

Origen de las masas de aire	Actividad media de ^{137}Cs y desviación típica (Bq/kg)	Número de casos
Norte de África	9.82 ± 1.05	19
Regional	7.81 ± 0.62	19
Atlántico	9.31 ± 0.83	17
Centroeuropa	11.25 ± 3.36	3
Mediterráneo	9.78 ± 3.12	1

En la figura 89 se observa el ajuste logarítmico-normal realizado para la concentración de actividad de ^{137}Cs y su correspondiente frecuencia. Dicho ajuste muestra una distribución con un máximo de valor $5.47 \cdot 10^{-7} \text{ Bq/m}^3$, con una desviación estándar geométrica asociada de valor 1.69.

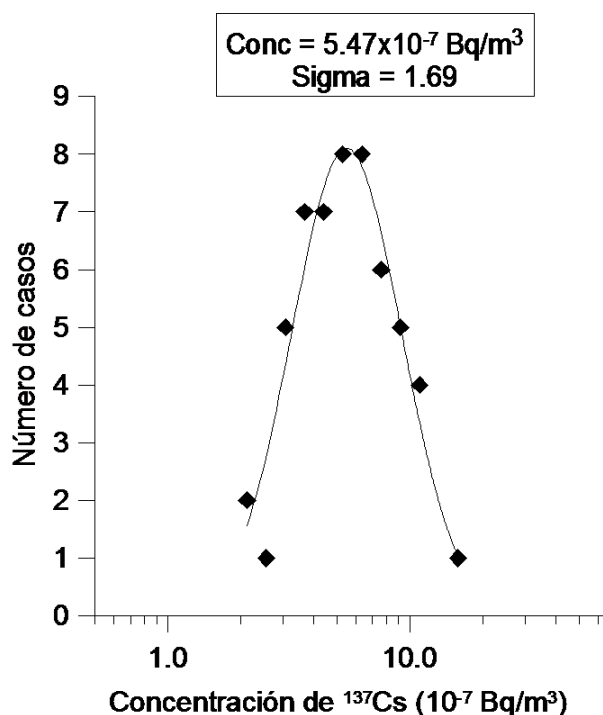


Figura 89: Ajuste logarítmico normal por frecuencias de la concentración de ^{137}Cs

4.7 Correlación entre los radionucleidos de vida larga y cantidad de polvo recogida

Se ha realizado un estudio que muestra las correlaciones entre las actividades de los diferentes radionucleidos medidos por el equipo de alto volumen, así como con la cantidad de polvo recogida en cada muestreo durante el período comprendido entre los años 2001 y 2009. En la tabla 18 se muestran los resultados de dicho estudio mediante los diferentes coeficientes de correlación de Pearson entre las variables medidas. Se observa una importante correlación entre ^{210}Pb y ^7Be , lo cual refuerza la hipótesis de que el origen del ^{210}Pb tiene lugar en la alta troposfera, al igual que el ^7Be . También se observa una correlación significativa entre la actividad medida de ^{40}K y la cantidad de polvo en gramos recogida, lo cual confirma la relación entre el ^{40}K y los fenómenos de resuspensión. Es importante puntualizar que el coeficiente de correlación de valor 0.34 entre el ^{40}K (Bq/m^3) y ^{137}Cs (Bq/m^3) ha sido calculado exclusivamente para los casos en los que ha existido detección de ^{137}Cs . En caso de haberse calculado para todos los episodios no hubiera existido correlación lineal alguna dado que en muy pocas ocasiones la actividad de ^{137}Cs sobrepasa el límite inferior de detección.

Tabla 18: Coeficientes de Pearson entre las concentraciones de los radionucleidos de vida larga y cantidad de polvo recogido en el filtro. Entre paréntesis el nivel de significación

Variables	Coefficiente de Pearson
${}^7\text{Be}$ (Bq/m^3) y ${}^{40}\text{K}$ (Bq/m^3)	0.27 (99%)
${}^7\text{Be}$ (Bq/m^3) y ${}^{210}\text{Pb}$ (Bq/m^3)	0.60 (99%)
${}^7\text{Be}$ (Bq/m^3) y ${}^{137}\text{Cs}$ (Bq/m^3)	-0.14 (no signif.)
${}^7\text{Be}$ (Bq/m^3) y polvo recogido (g)	0.02 (no signif.)
${}^{40}\text{K}$ (Bq/m^3) y ${}^{210}\text{Pb}$ (Bq/m^3)	0.24 (99%)
${}^{40}\text{K}$ (Bq/m^3) y ${}^{137}\text{Cs}$ (Bq/m^3)	0.34 (95%)
${}^{40}\text{K}$ (Bq/g) y ${}^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg)	0.11 (no signif.)
${}^{40}\text{K}$ (Bq/m^3) y polvo recogido (g)	0.48 (99%)
${}^{210}\text{Pb}$ (Bq/m^3) y ${}^{137}\text{Cs}$ (Bq/m^3)	0.17 (no signif.)
${}^{210}\text{Pb}$ (Bq/m^3) y polvo recogido (g)	0.02 (no signif.)
${}^{137}\text{Cs}$ (Bq/m^3) y polvo recogido (g)	0.14 (no signif.)

En la figura 90 se muestran las gráficas de las correlaciones más significativas, en este caso las referentes a la concentración de ${}^{210}\text{Pb}$ frente a concentración de ${}^7\text{Be}$, concentración de ${}^{40}\text{K}$ frente a la cantidad de polvo recogido en el filtro y concentración de ${}^{137}\text{Cs}$ frente a la concentración de ${}^{40}\text{K}$. En ellas se aprecia la tendencia positiva en los 3 casos, lo cual se corresponde con los coeficientes de Pearson mostrados en la tabla 18.

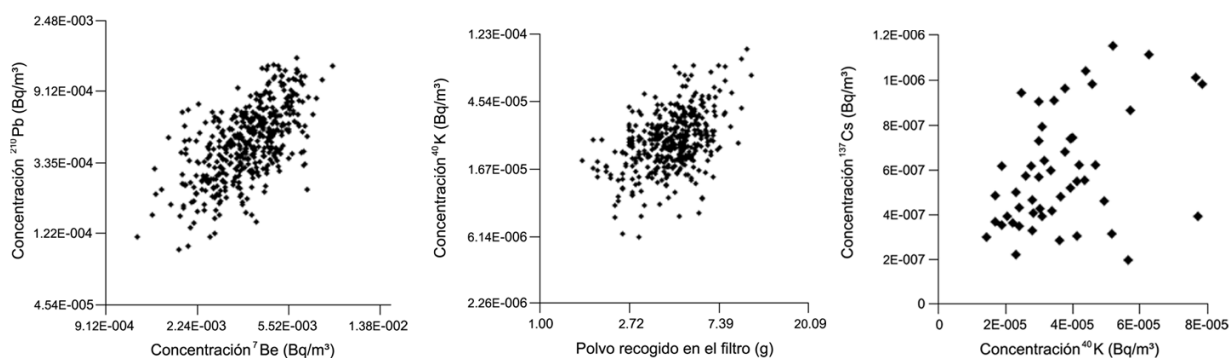


Figura 90: Concentraciones de ${}^{210}\text{Pb}$ frente a ${}^7\text{Be}$, ${}^{137}\text{Cs}$ frente a ${}^{40}\text{K}$ y ${}^{40}\text{K}$ frente a la cantidad de polvo recogido en el filtro

Estos valores se pueden contrastar con los encontrados en otros trabajos. En la tabla 19 (Vallés et al., 2009) se muestra de nuevo la correlación significativa entre las concentraciones de ${}^7\text{Be}$ y ${}^{210}\text{Pb}$, ${}^{40}\text{K}$ y ${}^{137}\text{Cs}$, así como entre la concentración de ${}^{40}\text{K}$ y la cantidad de polvo recogido en el filtro. Los coeficientes calculados en este trabajo son sensiblemente inferiores a los mostrados en la tabla 19. Tal y como se señala en el apartado 3.4.2, el valor del coeficiente de Pearson depende en gran medida del tamaño de la muestra. Los valores mostrados en la tabla 19 han sido calculados para un rango de muestreo que comprende el período entre los años 2001 y 2005, mientras que los valores

mostrados en la tabla 18 han sido calculados para el período comprendido entre los años 2001 y 2009.

Tabla 19: Coeficientes de Pearson entre las concentraciones de los radionucleidos de vida larga y cantidad de polvo recogido en el filtro (Vallés et al., 2009). Entre paréntesis el nivel de significación

Variables	Coefficiente de Pearson
${}^7\text{Be}$ (Bq/m ³) y ${}^{210}\text{Pb}$ (Bq/m ³)	0.69 (99%)
${}^{40}\text{K}$ (Bq/m ³) y ${}^{137}\text{Cs}$ (Bq/m ³)	0.43 (95%)
${}^{40}\text{K}$ (Bq/m ³) y polvo recogido (g)	0.76 (99%)

5 Tiempo de residencia de aerosoles

5.1 Introducción

El tiempo de residencia promedio de los aerosoles en la atmósfera es un parámetro que permite además de conocer el "envejecimiento" del aerosol, disponer de información sobre el origen de la formación del aerosol. En este capítulo se presentan los resultados obtenidos en Barcelona mediante las estimaciones realizadas en el INTE con el método AMAD, basado en el crecimiento del tamaño del ^{210}Pb , detallado en el apartado 3.5.3.2. Por los motivos indicados en dicho apartado, este método parece más robusto que otros tales como el cociente de actividades, ajustándose a las posibilidades ofrecidas por la instrumentación existente en el INTE.

5.2 Resultados

5.2.1 Estimación del AMAD del ^{214}Pb

Para realizar una estimación del tiempo de residencia promediado según el método detallado en el apartado 3.5.3.2, se ha estimado el $\text{AMAD}_{\text{inicial}}$ realizando una estimación del diámetro aerodinámico mediano radiactivo del ^{214}Pb . El procedimiento de medida de la actividad de los filtros del equipo para la medida del espectro dimensional de aerosoles radiactivos se encuentra detallado en el apartado 3.3.2.2.

Los resultados muestran valores que oscilan en un rango de entre $0.30 \mu\text{m}$ y $0.34 \mu\text{m}$, tal y como puede observarse en la tabla 20, en un total de 4 campañas para las cuales ha sido medido este valor. En promedio, se obtiene un valor AMAD de $0.32 \mu\text{m}$, con una desviación estándar geométrica promedio (sigma) de 1.67.

Tabla 20: AMAD del ^{214}Pb

Campaña	Inicio de campaña	Final de campaña	Inicio del recuento	AMAD ^{214}Pb (μm)	Desviación geométrica AMAD ^{214}Pb
1	10/01/2008 (10:20:00)	23/01/2008 (9:25:00)	23/01/2008 (9:45:00)	0.31	1.55
1	10/01/2008 (10:20:00)	23/01/2008 (9:25:00)	23/01/2008 (10:47:00)	0.31	1.67
1	10/01/2008 (10:20:00)	23/01/2008 (9:25:00)	23/01/2008 (11:00:00)	0.32	1.60
2	23/01/2008 (11:25:00)	07/02/2008 (10:15:00)	07/02/2008 (10:35:00)	0.30	1.65
2	23/01/2008 (11:25:00)	07/02/2008 (10:55:00)	07/02/2008 (11:15:00)	0.34	1.74
3	27/05/2009 (13:10:00)	10/06/2009 (9:40:00)	10/06/2009 (11:28:00)	0.30	1.60
4	14/10/2009 (12:20:00)	28/10/2009 (9:00:00)	28/10/2009 (10:37:00)	0.34	1.90

La figura 91 muestra como ejemplo la gráfica correspondiente a la estimación del AMAD del ^{214}Pb durante la campaña 4 indicada en la tabla 20, con un valor de $0.34 \mu\text{m}$ y una desviación geométrica estándar de 1.90. Estos resultados están en consonancia con otros estudios encontrados en la literatura. En la figura 92 se observa el AMAD correspondiente al ^{214}Pb en la ciudad de Sao José dos Campos (Brasil) (Silva, 2007). En este caso el diámetro se encuentra también entre 0.30 y $0.40 \mu\text{m}$. En el trabajo desarrollado por Reineking et al. (1988) el AMAD correspondiente al ^{214}Pb atmosférico es

de $0.37 \mu\text{m}$. Sin embargo, en el estudio de Bondiotti et al. (1987), se indica un valor de AMAD para el ^{214}Pb en el rango de $0.16 \mu\text{m}$, aproximadamente la mitad que el medido en estudios posteriores. Este resultado, comparado con el del resto de trabajos parece demasiado bajo, lo cual ocasiona que el tiempo de residencia calculado según el método de crecimiento del ^{210}Pb presente unos valores de tiempo de residencia promedio demasiado elevados (Papastefanou and Bondiotti, 1991).

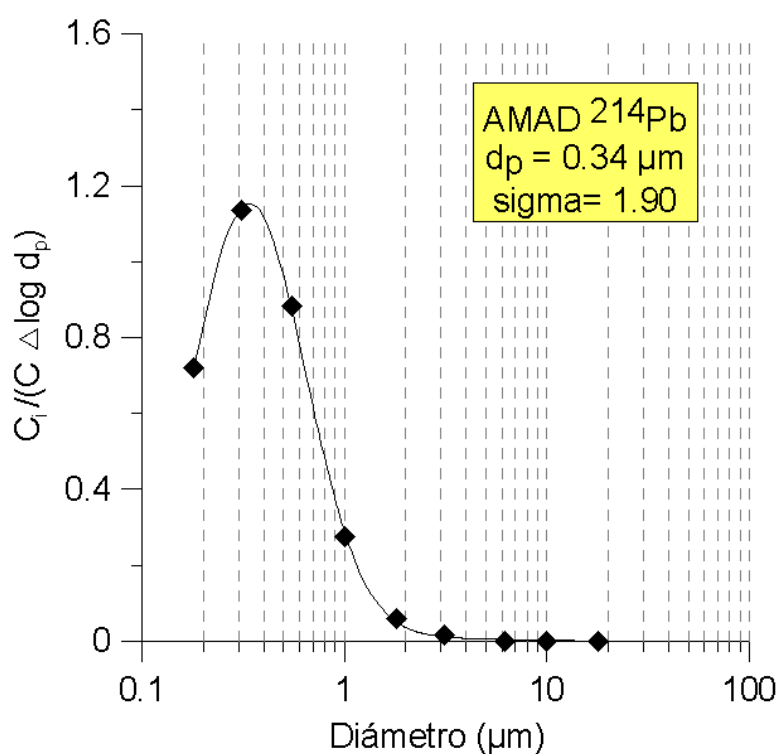


Figura 91: Ejemplo de AMAD correspondiente al ^{214}Pb en Barcelona

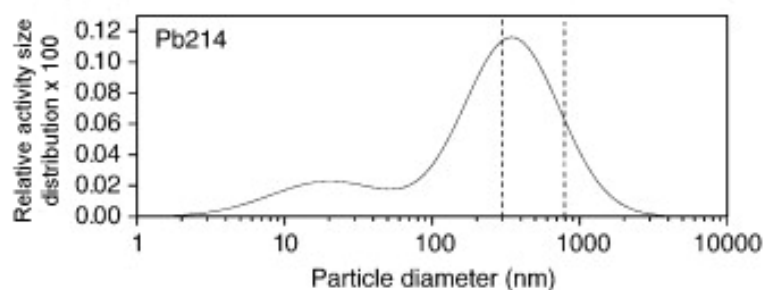


Figura 92: AMAD correspondiente al ^{214}Pb en Sao José dos Campos (Brasil) (Silva, 2007)

5.2.2 Estimación del tiempo de residencia

En la gráfica 93 se puede observar la evolución temporal del tiempo de residencia de los aerosoles muestreados en la ciudad de Barcelona desde mayo de 2006 hasta mayo de 2010. Los valores de tiempo de residencia han sido calculados mediante la expresión 11, descrita en el apartado 3.5.3.2. Las incertidumbres de estos valores de tiempo de residencia se han considerado proporcionales a las incertidumbres asociadas a la concentración de las actividades medidas en los filtros. El valor promediado del tiempo de residencia es de 5.86 días. El valor promediado del AMAD del ^{210}Pb es de $0.46 \mu\text{m}$ y su desviación estándar geométrica promediada es de 1.71. Los valores de AMAD del ^{210}Pb son similares a los medidos por Papastefanou y Bondietti (1991). Sin embargo, sus tiempos de residencia son mucho mayores que los estimados en el INTE. La razón, como ya se ha comentado anteriormente, se debe a que el $\text{AMAD}_{\text{inicial}}$ correspondiente al ^{214}Pb que se usa en dicho artículo tiene un valor de $0.16 \mu\text{m}$, la mitad del obtenido en este trabajo.

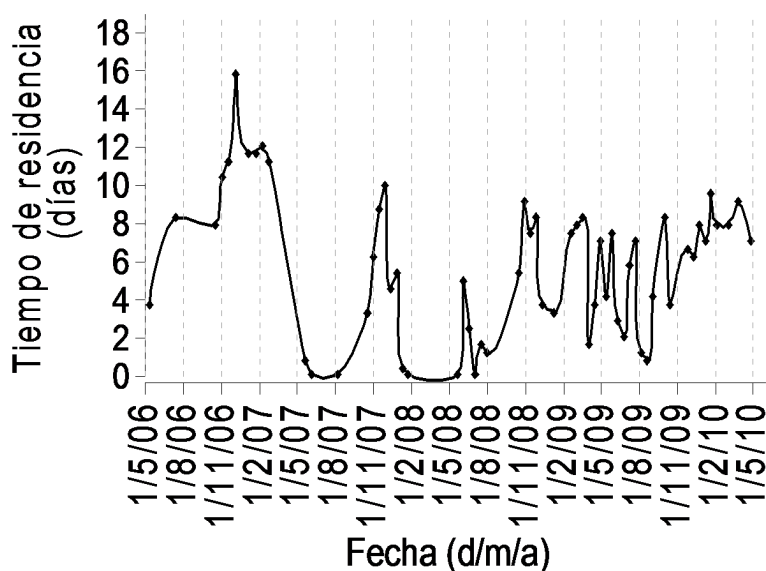


Figura 93: Tiempos de residencia obtenidos mediante el método del crecimiento del ^{210}Pb

La figura 93 muestra un valor mínimo de 0.1 y días y un valor máximo de 15.8 días. A continuación se realiza un análisis más detallado de los valores mostrados en la figura mediante un análisis estacional de los mismos.

5.3 Análisis estacional

El valor de tiempo de residencia promediado para cada una de las estaciones del año se muestra en la figura 94. Las barras de incertidumbre mostradas son relativas a la desviación típica del valor promediado de tiempo de residencia para cada una de las estaciones del año. El tiempo de residencia promedio de los aerosoles de ^{210}Pb en el medio aéreo es menor durante primavera y verano, alcanzando valores mayores durante el otoño e invierno. Los valores de tiempo de

residencia, desviación típica del valor medio del tiempo de residencia, AMAD del ^{210}Pb y desviación estándar geométrica del AMAD del ^{210}Pb se presentan en la tabla 21.

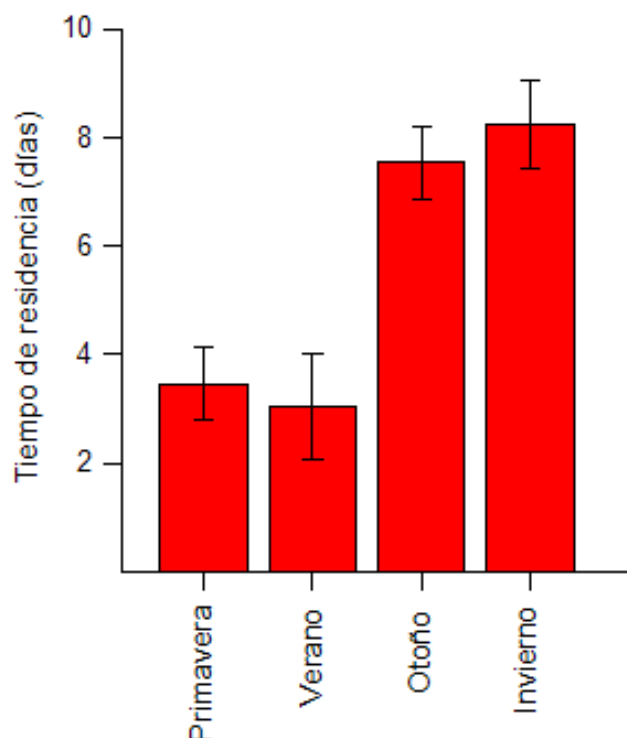


Figura 94: Promedio estacional del tiempo de residencia obtenido mediante el método del crecimiento del ^{214}Pb

Tabla 21: AMAD del ^{210}Pb y tiempo de residencia asociado para cada estación del año

Estación	Tiempo residencia (días)	Desviación típica tiempo residencia (días)	AMAD ^{210}Pb (μm)	Desviación geométrica del AMAD del ^{210}Pb
Primavera	3.45	0.67	0.40	1.66
Verano	3.04	0.97	0.39	1.69
Otoño	7.54	0.67	0.50	1.70
Invierno	8.25	0.81	0.51	1.69

Los resultados obtenidos por Winkler et al. (1998) en Neuherberg (Alemania) muestran un AMAD para el ^{210}Pb cuyo valor medio es de $0.43 \mu\text{m}$ durante los meses cálidos, menor que durante el resto de estaciones del año. Suponiendo un AMAD del ^{214}Pb prácticamente constante, esto nos conduciría a un tiempo de residencia bajo durante los meses cálidos y alto durante los fríos, acorde con los resultados obtenidos en el presente trabajo. En dicho trabajo, se indica que durante los meses de verano, con precipitaciones más intensas, los diámetros decrecen, tal y como se puede observar en la figura 95. Es entonces cuando se produce la formación de nuevos aerosoles (Winkler et al., 1998).

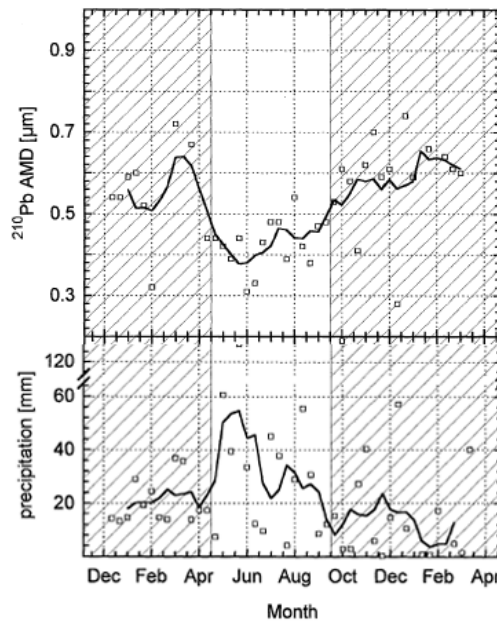


Figura 95: Evolución mensual del AMAD del ^{210}Pb en Neuherberg (Alemania) (Winkler et al., 1998)

En el trabajo desarrollado por Papastefanou y Bondietti (1991) se obtiene un valor de AMAD para el ^{210}Pb en la ciudad de Tennessee (U.S.A.) de valor $0.28 \mu\text{m}$ en invierno, y de $0.49 \mu\text{m}$ en verano. Esto supone un mayor tiempo de residencia en verano en esta ciudad, tal y como se observa en la figura 96.

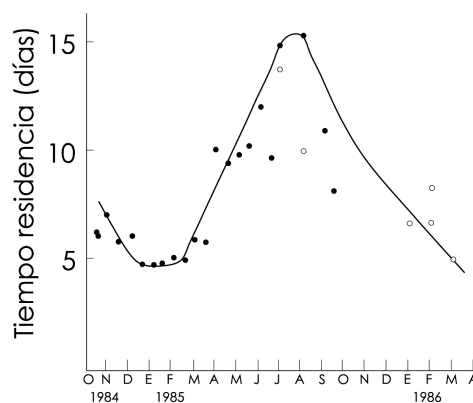


Figura 96: Evolución mensual del tiempo de residencia de los aerosoles atmosféricos entre octubre de 1984 y marzo de 1986 en el Oak Ridge National Laboratory (Tennessee, U.S.A.) (Papastefanou y Bondietti, 1991)

En la figura 97 se observa el resumen de la precipitación mensual de Tennessee. En este caso parece que los tiempos de residencia guardan también una relación inversa con la cantidad de lluvia recogida. Estos datos han sido obtenidos en la estación meteorológica del aeropuerto internacional de Memphis (Tennessee) situado a una altitud de 101 metros, cuyas coordenadas son latitud 35° 3' 40" N, longitud 89°59'06" O. La gráfica ha sido obtenida a través de la página web allmetsat.com, que ofrece datos climáticos de unas 3.000 estaciones meteorológicas mundiales.

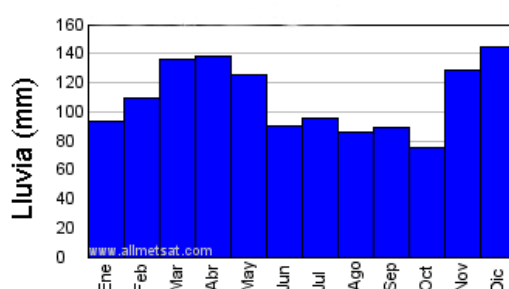


Figura 97: Resumen de precipitación mensual en Tennessee (mm)

Pueden existir otros factores distintos a las precipitaciones que condicionen los valores obtenidos de tiempo de residencia. En la ciudad de El-Minia (Egipto), los tiempos de residencia más bajos se dan durante el otoño y el invierno (tabla 22), ya que los meses de octubre a marzo son los que concentran los escasos días de lluvia en Egipto. Sin embargo, la primavera se caracteriza por el gran número de fuertes vientos calientes del sur cargados con partículas que desplazan los radionucleidos largas distancias provocando que aumente el tiempo de residencia. En verano las altas temperaturas provocan que las corrientes de convección transfieran los radionúclidos a las partes altas de la capa de mezcla provocando también un alto tiempo de residencia (Ahmed et al., 2004).

Tabla 22: Tiempo de residencia estacional calculado mediante el cociente de $^{210}\text{Pb}/^{214}\text{Pb}$ (Ahmed et al., 2004)

Estación	Tiempo de residencia (días)
Primavera	8.8 ± 1.5
Verano	13.0 ± 2.7
Otoño	10.6 ± 3.6
Invierno	9.5 ± 1.8

Los datos de lluvia en Barcelona durante el período de toma de muestras junto con los valores de tiempo de residencia se muestran en la figura 98. En ella se observa un ligero descenso del tiempo de residencia a partir de mayo de 2008, momento en el cual las precipitaciones comienzan a tener una mayor intensidad. Además, en numerosos casos se observa que el tiempo de residencia y la cantidad de agua de lluvia tienen una tendencia inversa.

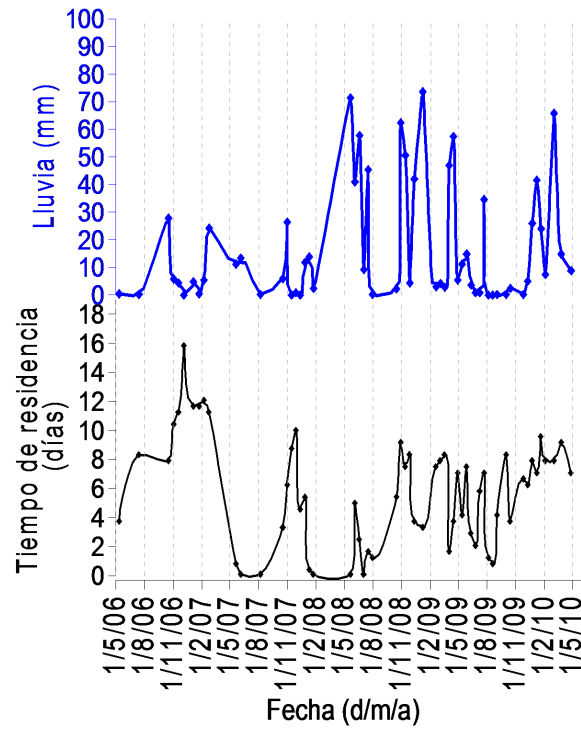


Figura 98: Evolución temporal del tiempo de residencia y lluvia

6 Determinación de los parámetros de velocidad de deposición seca y húmeda

6.1 Introducción

Los fenómenos de deposición son los mecanismos mediante los cuales la atmósfera se limpia de aerosoles. Existen dos tipos de mecanismos de deposición: deposición seca, que ocurre en la superficie de la tierra (suelo, agua o vegetación), y deposición húmeda. Cabe destacar que tanto la deposición seca como la húmeda, tienen gran importancia en la realización de estudios de valoración de riesgos sobre accidentes nucleares, puesto que la dosis de radiación externa liberada por el material depositado es a menudo la que posee una mayor contribución, proveniente de los contaminantes de vida larga, los cuales suponen el mayor riesgo con el paso de los años por la entrada en la cadena trófica alimenticia.

6.2 Velocidad de deposición seca

Para realizar las estimaciones de velocidad de deposición seca se ha utilizado el método indicado en el apartado 3.6.1 de este trabajo. A partir de la actividad de ^7Be en los filtros, y aplicando la expresión 12, se han obtenido los resultados mostrados en la figura 99. Las incertidumbres de estos valores han sido calculados mediante la propagación de las incertidumbres de la actividad de ^7Be en el filtro y concentración de actividad de ^7Be en el aire, para un factor de cobertura de $k=2$. El valor promedio de velocidad de deposición seca calculado para el ^7Be es de 0.12 cm/s.

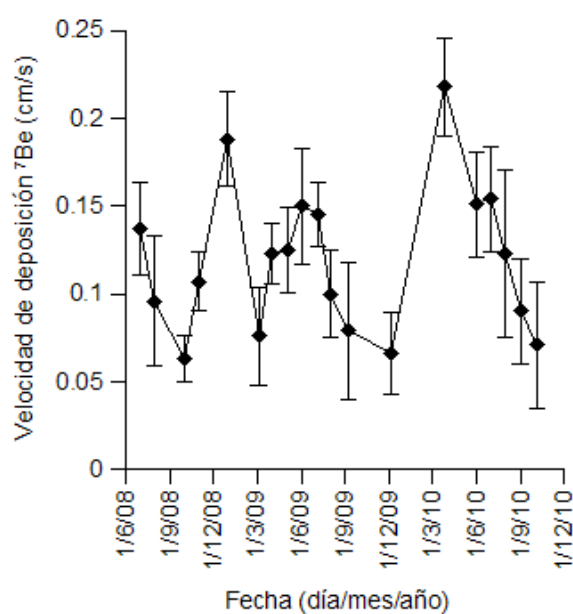


Figura 99: Evolución temporal del valor de la velocidad de deposición seca de ^7Be entre 2008 y 2010

Para poder determinar la velocidad de deposición seca del ^{210}Pb se deben realizar las medidas de los filtros acumulando en el detector de HPGGe al menos 6 de ellos e incrementando el tiempo de recuento en el detector para obtener un número de cuentas cuyo valor esté por encima de la actividad mínima detectada (AMD). En el caso del ^{40}K se ha calculado también una velocidad de deposición, mediante un procedimiento igual al del ^{210}Pb , siendo la medida muy cercana al límite inferior de detección. Los resultados obtenidos para ^{210}Pb y ^{40}K se muestran en la tabla 23.

Tabla 23: Velocidades deposición seca del ^{210}Pb y ^{40}K

Radionucleido	Fecha inicio	Fecha final	Velocidad de deposición seca (cm/s)	Incertidumbre velocidad deposición seca (cm/s)
^{210}Pb	04/06/2008	04/03/2009	0.25	0.09
^{210}Pb	05/03/2009	07/09/2009	0.11	0.06
^{40}K	05/03/2009	07/09/2009	1.84	0.23

En la tabla 24 se observa la comparativa entre los valores promediados de velocidad de deposición seca obtenidos en el presente trabajo y valores encontrados en la literatura. El resultado obtenido para el ^7Be está en consonancia con el obtenido por Rosner et al.(1996), pero bastante superior al indicado por Rangarajan et al. (1986). Los resultados referentes al ^{210}Pb están en consonancia con los mostrados en el resto de la literatura. No se ha encontrado en la literatura datos relativos a velocidad de deposición del ^{40}K . Sin embargo parece razonable que su valor se encuentre en un rango similar al del ^{137}Cs ya que ambos radionucleidos se incorporan a los filtros mediante fenómenos de resuspensión. Dado que los radionucleidos ^{137}Cs y ^{40}K están asociados a fenómenos de resuspensión, parece lógico que sus tamaños sean mayores y por tanto sus velocidades de deposición sean más altas que las correspondientes al ^7Be y ^{210}Pb .

Tabla 24: Valores promediados de velocidad de deposición seca

Autor	^7Be (cm/s)	^{210}Pb (cm/s)	^{137}Cs (cm/s)	^{40}K (cm/s)	Lugar
Este trabajo	0.12 ± 0.04	0.18 ± 0.08	-	1.84 ± 0.23	Barcelona
Rosner et al. (1996)	0.16 ± 0.08	-	1.46 ± 1.15	-	Alemania
Rangarajan et al. (1986)	0.023 ± 0.014	-	3.00 ± 1.73	-	India
Anand y Rangarajan (1990)	-	0.14 ± 0.07	-	-	India
Lambert et al. (1983)	-	0.17	-	-	Antártida
Knuth et al. (1983)	-	0.10	-	-	EEUU

6.3 Coeficiente de lavado por deposición húmeda

Para realizar las estimaciones acerca del parámetro relativo a la deposición húmeda o coeficiente de lavado por deposición húmeda, se ha utilizado el método descrito en el apartado 3.6.2. El único radionucleido cuya actividad medida supera el límite inferior de detección en el agua de lluvia es el ^7Be . Por tanto solo se han calculado el parámetro de coeficiente de lavado por deposición húmeda relativo a este isótopo radiactivo. Los resultados han sido obtenidos mediante la aplicación de la expresión 13. La incertidumbre del coeficiente de lavado por deposición húmeda ha sido también

calculado mediante la propagación de las incertidumbres de la actividad de ^7Be en el agua de lluvia y concentración de actividad de ^7Be en el aire, para un factor de cobertura de $k=2$. Las fluctuaciones de este parámetro son amplias, tal como se aprecia en la figura 100, con valores de entre 311 y 1818.

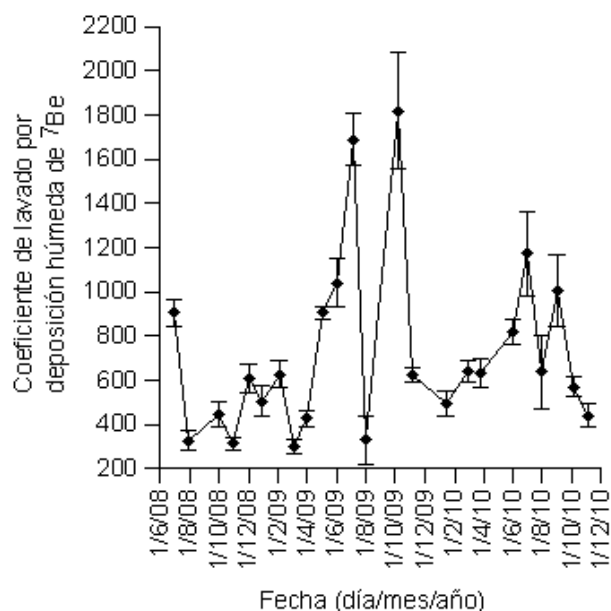


Figura 100: Evolución del valor del coeficiente de lavado por deposición húmeda de ^7Be entre 2008 y 2010

El valor promedio del coeficiente de lavado por deposición húmeda para ^7Be es de 719 con una incertidumbre asociada al valor medio de 81. El resto de coeficientes encontrados en la literatura se pueden observar en la tabla 25. Tal y como se observa, presentan valores muy dispares.

Tabla 25: Valores promedio del coeficiente de lavado por deposición húmeda

Autor	^7Be	^{210}Pb	^{137}Cs	Lugar
Este trabajo	719	-	-	Barcelona
Papastefanou and Ioannidou (1991)	144	-	1295	Grecia
Peirson and Keane (1962)	-	-	560	Reino Unido
Peirson and Cambray (1965)	-	-	680	Reino Unido
Cambrey et al. (1970)	-	-	730	Reino Unido
Todd et al. (1989)	370	215	-	EEUU
McNeary and Baskaran(2003)	948	637	-	EEUU
Garland and Playford(1991)	-	-	230-6600	Reino Unido
Chamberlain (1960)	-	430	230	Reino Unido
Peirson et al. (1966)	-	530	-	Reino Unido
Clark and Smith (1988)	-	-	700	Reino Unido

6.3.1 Análisis estacional

En la figura 101 se observa la evolución por estaciones de los valores obtenidos del coeficiente de lavado por deposición húmeda para el ^7Be . Las barras de incertidumbre mostradas son relativas a la desviación típica del valor promediado del coeficiente de lavado por deposición húmeda para cada una de las estaciones del año. Tal y como se observa, el valor del coeficiente presenta una alta dispersión durante las estaciones de primavera y verano. Para establecer unas conclusiones firmes acerca de la evolución estacional del coeficiente de lavado por deposición húmeda sería necesario disponer de un volúmen de datos mayor, reduciendo así la desviación típica del valor del coeficiente de lavado por deposición húmeda, especialmente durante primavera y verano. Atendiendo a los datos disponibles, la gráfica sugiere un coeficiente de lavado por deposición húmeda menor durante otoño e invierno, a pesar de que durante esta época del año la concentración de ^7Be es menor. Cabe por tanto esperar que los chubascos puntuales ocurridos frecuentemente durante primavera y verano, de corta duración pero intensos, arrastren con ellos una cantidad importante de ^7Be , provocando así el incremento del coeficiente de lavado por deposición húmeda referente a la deposición húmeda.

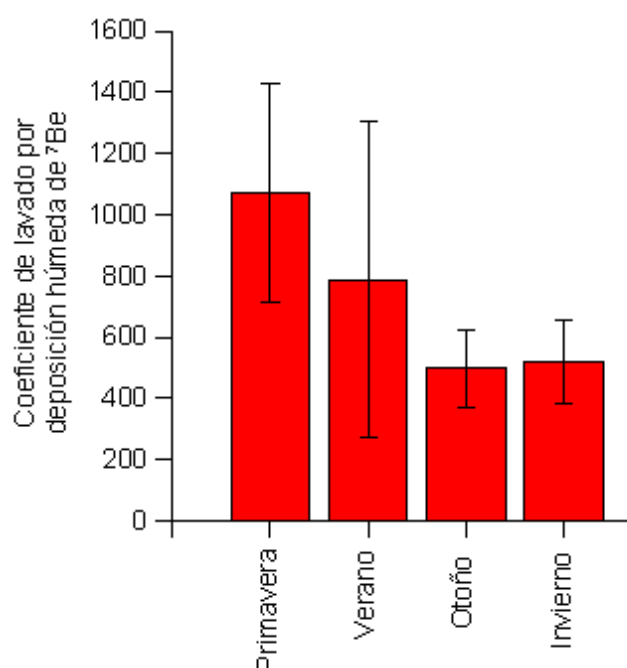


Figura 101: Promedio estacional del coeficiente de lavado por deposición húmeda de ^7Be

Parte IV

Conclusiones

7 Conclusiones

7.1 Conclusiones generales

El estudio realizado ha permitido disponer de un mejor conocimiento de las características y comportamiento de los aerosoles radiactivos en una zona urbana de una cierta complejidad topográfica como es la ciudad de Barcelona.

La instrumentación nuclear y meteorológica existente en las estaciones de muestreo radiológico de la UPC ha permitido al INTE disponer de un extenso volumen de datos para caracterizar el comportamiento de los aerosoles radiactivos atmosféricos en Barcelona. Estos equipos desarrollan también una labor de vigilancia radiológica atmosférica.

El estudio realizado permite ser una referencia en cuanto a las características de los aerosoles radiactivos existentes en la ciudad de Barcelona, y de forma más amplia, puede ser usado en otros estudios de aerosoles radiactivos.

A continuación se presentan las conclusiones que se pueden extraer de este trabajo, estructuradas según los diferentes capítulos indicados en el índice. Además, se ha incluido un apartado de conclusiones relativo a los estudios futuros y mejoras a realizar teniendo en cuenta la metodología aplicada y los resultados obtenidos.

7.2 Instrumentación y metodología

Los equipos utilizados para la medida de los aerosoles en este trabajo han sido los siguientes: un monitor de aerosoles radiactivos en continuo, un monitor de tasa de dosis, un equipo de medida de actividad de agua de lluvia, un equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volumen, un detector de alta pureza de Germanio, un contador proporcional alfa-beta e instrumentación meteorológica. Durante el desarrollo de la tesis se ha incorporado la siguiente instrumentación: un equipo para la medida del espectro dimensional de aerosoles radiactivos y un medidor de deposición seca y húmeda de aerosoles radiactivos.

El trabajo bibliográfico de búsqueda de los diferentes métodos de determinación del tiempo de residencia existentes en la literatura muestra que actualmente son utilizados principalmente dos métodos: el método del cociente de actividades y el método del crecimiento del AMAD en aerosoles radiactivos.

El método escogido en este trabajo para determinar el tiempo de residencia por su robustez y aplicabilidad ha sido el método de crecimiento del AMAD del ^{214}Pb , acorde con la instrumentación existente en el INTE. El método del cociente de actividades fue descartado debido a los problemas derivados de la incertidumbre asociada a la medida de actividad de ^{210}Po en los filtros.

7.3 Análisis estadístico

La instrumentación y métodos utilizados en la tesis ha permitido realizar estudios y correlaciones acerca de los siguientes radionucleidos: descendientes de vida corta del ^{222}Rn (^{218}Po , ^{214}Pb y ^{214}Bi), ^7Be , ^{40}K , ^{210}Pb y ^{137}Cs .

La mayor parte de la concentración de actividad en el medio aéreo la proporcionan los aerosoles naturales, concretamente los descendientes de vida corta del ^{222}Rn : ^{218}Po , ^{214}Pb y ^{214}Bi , con concentraciones habituales de entre 1 y 5 Bq/m^3 . Los aerosoles cosmogénicos también tienen un aporte significativo en la concentración de actividad del medio aéreo. Las frecuencias de las concentraciones en el aire de los diferentes radionucleidos estudiados en este trabajo se pueden ajustar a una distribución logarítmico-normal. Los diferentes valores de media geométrica y desviación estándar geométrica obtenidos para cada uno de los radionucleidos tratados en este trabajo se muestran en la tabla 26.

Tabla 26: Resultados de distribución logarítmico-normal por frecuencias para los diferentes radionucleidos estudiados en este trabajo

Radionucleido	Media geométrica	Desviación geométrica estándar
Descendientes de ^{222}Rn	2.01 Bq/m^3	1.92
^7Be	3.74 mBq/m^3	1.40
^{40}K	25.02 $\mu\text{Bq/m}^3$	1.45
^{210}Pb	0.45 mBq/m^3	0.59
^{137}Cs	0.55 $\mu\text{Bq/m}^3$	1.69

Los resultados de evolución horaria de concentración de descendientes de ^{222}Rn se corresponden con los ya existentes en la literatura. Presentan un máximo correspondiente a las primeras horas de la mañana y un mínimo durante la tarde. Esta evolución es inversa a la de la altura de la capa de mezcla. El análisis espectral realizado mediante el periodograma muestra su correspondiente evolución cíclica de 24 horas y anual.

Los resultados de evolución estacional muestran que la concentración de descendientes de radón es mayor durante el invierno y más baja durante los meses cálidos. Además, el rango en el cual varía la concentración de descendientes es menor durante los meses de invierno dado que la variación de la altura de la capa de mezcla es inferior durante el invierno.

Mediante el desequilibrio existente entre ^{214}Bi y ^{214}Pb en el agua de lluvia, se ha realizado una estimación del tiempo transcurrido desde el momento en el cual se forma la gota hasta que esta llega al suelo. Los cálculos realizados muestran resultados de entre 53 minutos y 4 horas con 27 minutos.

La rosa de vientos muestra mayor concentración de radón para velocidades de viento bajas excepto para direcciones de entre 281.3 y 348.8 grados, donde se encuentra la sierra de Collserola, de constitución granítica, que favorece la exhalación de radón.

La mayor concentración de ^7Be se da durante los meses cálidos ya que durante estos meses se producen numerosas intrusiones de viento procedentes de las capas altas de la troposfera.

El periodograma muestra una variación cíclica de las concentraciones de ^7Be de un año. En una escala temporal más amplia, el ^7Be muestra ciclos temporales de unos 11 años, que presentan correlación inversa con el número de manchas solares existentes.

El periodograma realizado sobre los datos de concentración de ^{40}K no muestra una evolución temporal periódica de ningún tipo. Sin embargo se advierte un incremento notable durante el promedio realizado durante el mes de junio, debido a la pirotecnia de la festividad de San Juan, que tiene lugar el 23 de junio y supone una fuente adicional externa de ^{40}K durante esta semana.

La concentración de actividad de ^{210}Pb presenta un período de un año según el periodograma. La evolución mensual es similar a la del ^7Be , con máximos durante los meses cálidos. El motivo puede ser la existencia de ^{210}Pb en la alta troposfera. Durante los meses de verano, el aire caliente próximo a la superficie terrestre tiende a ascender, produciéndose un ciclo de circulación convectiva que transporta masas de aire con mayor concentración de ^{210}Pb hacia la superficie terrestre desde las capas altas de la troposfera.

La probabilidad de que se produzca un episodio de detección de ^{137}Cs aumenta con el número de días en los que el las masas de aire provienen de África. Por tanto, los fenómenos de resuspensión desde distancias lejanas, en este caso debido a intrusiones de polvo sahariano, supone un aumento de probabilidad de detección del ^{137}Cs en Barcelona. Los fenómenos de resuspensión local parecen tener una escasa incidencia en la probabilidad de detección de ^{137}Cs .

La probabilidad de detección de ^{137}Cs decrece para masas de aire procedentes del mar mediterráneo y océano atlántico. Esta probabilidad hubiera sido alta en caso de que fueran frecuentes en Barcelona las masas de aire procedentes de Centroeuropa, dado que existe una alta deposición de ^{137}Cs en el suelo centroeuropeo.

valor hubiera sido considerablemente mayor si se hubieran producido episodios en los cuales todos los días la procedencia de las masas de aire hubieran sido del centro de Europa. Como este hecho no ha sucedido, dicha actividad específica queda promediada con las menores actividades de otras procedencias.

Los coeficientes de correlación de Pearson entre los radionucleidos de vida larga muestran una importante correlación entre el ^7Be y el ^{210}Pb , dado que en ambos casos la principal aportación de actividad procede de las capas altas de la troposfera. Existe también una correlación significativa entre la actividad de ^{40}K y la cantidad de gramos de polvo recogidos en cada muestra, lo que confirma el papel fundamental de los fenómenos de resuspensión en la detección de ^{40}K .

7.4 Tiempos de residencia

El AMAD del ^{214}Pb obtenido en este trabajo presenta un valor promedio de $0.32 \mu\text{m}$, con una desviación estándar geométrica de 1.67.

El valor promedio de AMAD de ^{210}Pb es de $0.46 \mu\text{m}$, con una desviación estándar geométrica de 1.71.

El valor promedio de tiempo de residencia obtenido mediante el uso del método de crecimiento del ^{214}Pb es de 5.86 días.

El tiempo de residencia obtenido mediante el uso del método de crecimiento del ^{214}Pb presenta valores más altos durante otoño e invierno, y valores más bajos durante primavera y verano. La lluvia es un importante fenómeno meteorológico que supone una limpieza de los aerosoles radiactivos atmosféricos y por tanto provoca que el tiempo de residencia de las partículas en el aire disminuya.

7.5 Deposición seca y húmeda

Se han analizado las velocidades de deposición seca para diferentes radionucleidos en Barcelona. Los valores promedio obtenidos han sido 0.12 ± 0.04 cm/s para el ^7Be , 0.18 ± 0.08 cm/s para el ^{210}Pb y 1.84 ± 0.23 cm/s para el ^{40}K .

El parámetro que caracteriza la deposición húmeda es el coeficiente de lavado por deposición húmeda, que presenta una gran variabilidad en la literatura. El valor promedio de coeficiente de lavado por deposición húmeda en este trabajo para el ^7Be es de 719, con una desviación típica asociada de valor 81.

El valor promedio del coeficiente de lavado por deposición húmeda presenta un valor bajo durante los meses de otoño e invierno y alto durante primavera y verano. Cabe por tanto esperar que los chubascos puntuales ocurridos frecuentemente durante primavera y verano, de corta duración pero intensos, arrastren con ellos una cantidad importante de ^7Be , provocando así el incremento del coeficiente de lavado por deposición húmeda.

7.6 Estudios futuros y mejoras

La utilización de modelos avanzados de dispersión de partículas mediante técnicas de inversión permitiría poder estimar con mayor fiabilidad el origen de los distintos radionucleidos detectados (Stohl et al., 2011).

Un estudio del comportamiento de los diferentes radionucleidos analizados en el presente trabajo a una mayor altura proporcionaría información acerca de la influencia de las inversiones térmicas en el comportamiento de los aerosoles radiactivos. Actualmente en el INTE se están desarrollando estudios acerca de la evolución de la concentración de ^{222}Rn en altura (Grossi et al., 2011). Sería interesante observar el comportamiento de otros isótopos radiactivos, tales como ^7Be , ^{210}Pb y ^{137}Cs .

Una vez se disponga de un mayor volumen de datos relativos al tiempo de residencia y parámetros de deposición seca y húmeda se podrá realizar un análisis estadístico estacional y mensual con una menor incertidumbre.

Los valores de actividad de los diferentes radionucleidos detallados en este trabajo pueden ser utilizados como fondo radiactivo para contrastarlos con los obtenidos a raíz del accidente nuclear de Fukushima, ocurrido durante el 11 de marzo de 2011.

Finalmente, a raíz del accidente nuclear de Fukushima sería de interés incluir el ^{131}I en el grupo de radionucleidos estudiados (Masson et al., 2011). En este sentido, cabe destacar que también se podría llevar a cabo un análisis para conocer el comportamiento de las distintas formas físico-químicas en las que se encuentran los radioiodos.

Parte V

Referencias

8 Referencias

- Ahmed A A, Mohamed A, Ali A E, Barakat A, Abd El-Hady M, El-Hussein A (2004). Seasonal variations of aerosol residence time in the lower atmospheric boundary layer. *Journal of Environmental Radioactivity* 77, pp. 275-283.
- Akata N, Kawabata H, Hasegawa H, Sato T, Chikuchi Y, Kondo K, Hisamatsu S, Inaba J (2008). Total deposition velocities and scavenging ratios of ^7Be and ^{210}Pb at Rokkasho, Japan. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 277, no. 2, pp. 347-355.
- Arkian F, Salahinejad M, Bidokhti A A, Meshkatee A (2008). Analysis of gross alpha, gross beta activities and ^7Be concentrations in surface air: their variations and statistical prediction model. *Environmental Monitoring Assessment* 140, pp. 235-330.
- Al Hamarneh I, Wreikat A, Toukan K (2003). Radioactivity concentrations of ^{40}K , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ radionuclides in Jordanian soil samples. *Journal of Environmental Radioactivity* 65, pp. 53-76.
- Alegria N, Herranz M, Idoeta R y Legarda F (2009). Estudio de la concentración de ^7Be atmosférico. Congreso física médica y protección radiológica.
- Alegria N, Herranz M, Idoeta R, Legarda F (2010). Study of ^7Be activity concentration in the air of northern Spain. *J. Radional. Nucl. Chem* 286, pp.347-351.
- Ali N, Khan E U, Akhter P, Khattak N U, Khan F, Rana M A (2011). The effect of air mass origin on the ambient concentrations of ^7Be and ^{210}Pb in Islamabad, Pakistan. *Journal of Environmental Radioactivity* 102, pp. 35-42.
- Almgren S (2008). Studies on the gamma radiation environment in Sweden with special reference to ^{137}Cs . Tesis doctoral Department of Radiation Physics. Göteborg University. Sahlgrenska University Hospital.
- Anand S J S and Rangarajan C (1990). Studies on the Activity Ratios of ^{210}Po to ^{210}Pb and their dry-deposition velocities at Bombai in India. *Journal of Environmental Radioactivity* 11, pp. 235-250.
- Andersson K G (2009). Airborne radioactive contamination in inhabited areas. Radioactivity in the environment. Volume 15. Edited by: K.G. Andersson. Series Editor: M.S. Baxter.
- Arnold Arias, D (2009). Study of the atmospheric radon concentration dynamics at the Spanish radiological surveillance stations and its application to air mass movements. Tesis doctoral Instituto de Técnicas Energéticas. Universidad Politécnica de Cataluña.
- Azahra M, Camacho-García A, González-Gómez C, López-Peñalvera JJ and El Bardounid T (2003). Seasonal ^7Be concentrations in near-surface air of Granada (Spain) in the period 1993-2001. *Applied Radiation and Isotopes* Volume 59, Issues 2-3, pp. 159-164
- Azahra M, López-Peñalver A, Camacho-García A, González-Gómez C, El Bardouni T, Boukhal H (2004). Atmospheric concentrations of ^7Be and ^{210}Pb in Granada, Spain. *Journal Radioanalytical*

and nuclear chemistry, 261 (2), pp. 401-405.

Azahra M, González-Gómez C, López-Peñalver J J, El Bardouni T, Camacho-García A, Boukhal H, El Moussaoni F, Chakir E, Erradi L, Kamili A, Sekaki A (2004). The seasonal variation of ^7Be and ^{210}Pb concentrations in air. *Radiation Physics and Chemistry*, 71, pp. 789-790.

Backburn R and Gueran J (1979). Annual rate of release of radon to the atmosphere as a result of a coal combustion in the United Kingdom. *Radiation Physics and Chemistry*. Volume 13, Issues 3-4, pp. 145-147.

Baeza A, del Río L M, Jiménez A, Miró C, Paniagua J M, Rufo M (1996). Analysis of the temporal evolution of atmospheric ^7Be as a vector of the behavior of other radionuclides in the atmosphere. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. Vol 207, No.2, pp. 331-344.

Baeza A, Rodríguez A y Guillén F J (2009). Radionucleidos presentes en los aerosoles de una localización exenta de nuevos aportes artificiales. XVII congreso nacional de SEFM Física Médica y Protección Radiológica.

Baixeras C, Bach J, Amgarou K, Moreno V, Font Ll (2005). Radon levels in the volcanic region of La Garrotxa, Spain. *Radiation Measurements*, 40, pp. 509-512.

Baixeras C, Erlandsson B, Font Ll, Jönsson G (2001). Radon emanation from soil samples. *Radiation Measurements*, 34, pp. 441-443.

Barrachina Gómez M, Cerrolaza Asenjo J A, García alonso J M, Iranzo Martín J E, López Pérez B, Minguez Torres E, Pascualena Cambra M T, de la Poza Galiano A, Secades Ariz I. (1993). El riesgo en la producción de electricidad. *Cuestiones sobre la energía* (ed. Forum Atómico Español) Cap. 12. 187, pp. 195-196.

Baskaran M and Shaw G E (2001). Residence time of arctic haze aerosols using the concentrations and activity ratios of ^{210}Po , ^{210}Pb , and ^7Be . *Journal of aerosol science* 32, pp. 443-452.

Beks J P, Eisma D, van der Plitch J (1998). A record of atmospheric ^{210}Pb deposition in The Netherlands. *The Science of the Total Environment* 222, pp. 35-44.

Blagoeva L and Zikovsky L (1995). Geographic and vertical distribution of ^{137}Cs in soils in Canada. *Journal of Environmental Radioactivity*. Volume 27, Issue 3, pp. 269-274.

Bolívar J P, García-Tenorio R, Mas J L, Vaca F (2002). Radioactive impact in sediments from an estuarine system affected by industrial wastes releases. *Environment International* 27, pp. 639-645.

Bolívar J P, García-Tenorio R, García-León M (1995). Fluxes and distribution of natural radionuclides in the production and use of fertilizers. *Applied Radiation Isotopes* vol. 46, No. 6/7, pp. 717-718.

Bondietti EA, Papastefanou C, Rangarajan C (1987). Aerodynamic size associations of natural radioactivity with ambient Aerosols. *Radon and Its Decay Products. Occurrence, properties, and health effects*. ACS symposium series 331, chapter 28, pp. 377-397.

Caballero Folch R (2008). Millora del monitor d'aerosols radioactius de l'estació radiometeorològica del Campus Nord. Proyecto Final de Carrera. INTE (UPC).

Camacho A, Vallés I, Vargas A, Gonzalez-Perosanz M A, Ortega X (2009). Activity size distributions for long-lived radon decay products in aerosols collected in Barcelona (Spain). *Applied Radiation and Isotopes* 67, pp. 872-875.

Cambray R S, Fischer E M R, Brooks W L, Peirson D H (1970). Radioactive fallout in air and rain:

- Results to the middle of 1970. AERE Report R-6556, HMSO, London.
- Celestina A (2005). Radon and thoron progeny concentration variability in relation to meteorological conditions at Bucharest (Romania). *Journal of Environmental Radioactivity* 83, pp. 171-189.
- Chamberlain A C (1960). Aspects of the deposition of radioactive and other gases and particles. *Int. J. Air Pollut.* 3, pp. 63-88.
- Clark M J, Smith F B (1988). Wet and dry deposition of Chernobyl releases. *Nature* 332, pp. 245-249.
- Clarke R H and Macdonald H F (1978). Radioactive releases from nuclear installations. Evaluation of accidental atmospheric discharges. *Progress in nuclear energy*, vol 2, pp. 77-152.
- Coll P A (2005). Aplicació de la distribució i migració de radionúclids naturals i artificials a l'estudi dels processos erosius en conques hidrològiques catalanes. Tesis doctoral Instituto de Técnicas Energéticas. Universidad Politécnica de Cataluña.
- Condomines M, Gauthier P J, Tanguy J C, Gertissier R, Thouret J C, Berthommier P and Camus G (2005). ^{226}Ra or $^{226}\text{Ra}/\text{Ba}$ dating of Holocene volcanic rocks: application to Mt. Etna and Merapi volcanoes. *Earth and Planetary Science Letters* 230 (3-4), pp. 289-300.
- Cortès G, Sempau J, Ortega X (2001). Automated measurement of radon daughters ^{214}Bi and ^{214}Pb in rainwater. *Nukleonika*, vol 46 (4), pp. 161-164.
- Cortès Rosell, G (2001). Aportaciones al estudio de los campos de radiación ionizante ambientales. Tesis doctoral Instituto de Técnicas Energéticas. Universidad Politécnica de Cataluña.
- CSN (2003). Procedimiento para la evaluación de incertidumbres en la determinación de la radiactividad ambiental. Colección de informes Técnicos 11.2003. Serie Vigilancia Radiológica Ambiental. Procedimiento 1.3.
- CSN (2004). Selección, preparación y uso de patrones para espectrometría gamma. Colección de Informes Técnicos 11.2004. Serie Vigilancia Radiológica Ambiental. Procedimiento 1.4.
- CSN (2007). Colección Informes Técnicos del CSN. Programas de vigilancia radiológica ambiental. Resultados 2007.
- CSN (2010). INT-04.21 Estimación de las dosis a la población por la exposición debida al funcionamiento de las instalaciones nucleares y radiactivas del ciclo de combustible, y a la radiación natural. Colección de informes técnicos CSN 25.
- Cuculeanu V and Popa C (1994). Analytical calculation of the vertical activity distribution of radon daughters in the ambient air. *Radiation Protection Dosimetry* vol. 56, pp. 197-198.
- Currie L A (1968). Limits for qualitative detection and quantitative determination - application to radiochemistry. *Analytical Chemistry* 40, pp. 586-593.
- Daish S R, Daoe A A, Dale C J, May R, Rowe J E (2005). The temporal variations of ^7Be , ^{210}Pb and ^{210}Po in air in England. *Journal of Environmental Radioactivity* 84, pp. 457-467.
- Dasch J M and S.H.Cadle (1985). Wet and dry deposition monitoring in southeastern Michigan. *Atmospheric Environment* vol. 19, No. 5, pp. 789-796.
- Davidson C I, Chu L, Grimm T C, Nasta M A, Qamoos M P (1981). Wet and dry deposition of trace elements onto the greenland ice sheet. *Atmospheric Environment*, vol. 15, no. 8, pp. 1429-1437.
- Dlugosz M, Grabowski P, Henryk B (2010). ^{210}Pb and ^{210}Po radionuclides in the urban air of Lodz, Poland. *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry* 283, pp. 719-725.

- Dueñas C, Fernández MC, Carretero J, Liger E, Cañete S (2004). Long-term variation of the concentrations of long-lived Rn descendants and cosmogenic ^7Be and determination of the MRT of aerosols. *Atmospheric environment* 38, pp. 1291-1301.
- Dueñas C, Fernández MC, Carretero J, Liger E, Cañete S (2005). Deposition velocities and washout ratios on a coastal site (southeastern Spain) calculated from ^7Be and ^{210}Pb measurements. *Atmospheric Environment* 39, pp. 6897-6908.
- EC (2001). Radiation Protection 122. Practical use of the concepts of clearance and exemption. Part I. Guidance on general clearance levels for practices, Luxembourg: European Communities.
- EL-Hussein A, Mohamemed A, Abd EL-Hady M, Ahmed A A, Ali A E and Barakat A (2001). Diurnal and seasonal variation of short-lived radon progeny concentration and atmospheric temporal variations of ^{210}Pb and ^7Be in Egypt. *Atmospheric Environment* 35, pp. 4305-4313.
- El-Hussein, Mohammed A, Ahmed A A (1998). Study on radon and radon progeny in surface air of El-Minia, Egypt. *Radiation protection dosimetry*. vol 78, no 2, pp. 139-145.
- Engelbrecht R, Schwaiger M (2008). State of the art of standard methods used for environmental radioactivity monitoring. *Applied Radiation and Isotopes* 66, pp. 1604-1610.
- Feely W, Larsen R J, Sanderson C G (1989). Factors that cause seasonal variations in beryllium-7 concentrations in surface air. *J. Environmental Radioactivity* 9, pp. 223 - 249.
- Gaffney J S, Marley N A, Cunningham M M (2004). Natural radionuclides in fine aerosols in the Pittsburgh area. *Atmospheric Environment* 38, pp. 3191-3200.
- Gaggeler H W, Jost D T, Baltensperger U, Schwikowski M and Seibert P (1995). Radon and Thoron decay product and ^{210}Pb measurements at Jungfraujoch, Switzerland. *Atmospheric Environment* vol. 29, No 5, pp. 607-616
- García-Talavera M, Quintana B, García-Díez E, Fernández F (2001). Studies on radioactivity in aerosols as a function of meteorological variables in Salamanca (Spain). *Atmospheric Environment*, Volume 35, Issue 2, 2001, pp. 221-229.
- Garland J A, Playford K (1990). Deposition and resuspension of radiocesium after Chernobyl. In: *Proceedings of Seminar on Comparative Assessment of the Environmental Impact of Radionuclides during Three Major Nuclear Accidents: Kysthym, Windscale, Chernobyl*, Rep. EUR 13574, Luxembourg, vol. I, pp. 237-253, 1991.
- Gilaberte Elvira, S (2007). Optimización del funcionamiento de las estaciones radiometeorológicas de la UPC. Proyecto Final de Carrera. INTE (UPC).
- Gonzalez-Gómez C, Azahra M, López-Peñalver J J, Camacho-García A, El Bardouni T, Boukhal H (2006). Seasonal variability in ^7Be depositional fluxes at Granada, Spain (2006). *Applied Radiation and Isotopes*, 64, pp. 228-234.
- Grossi C, Arnold D, Adame J A, López-Coto i, Bolívar J P, de la Morena B A, Vargas A (2011). Atmospheric ^{222}Rn concentration and source term at El Arenosillo 100 m meteorological tower in Southwest Spain. *Journal of Radiation Measurements*. doi:10.1016.
- Gründel M, Porstendörfer J (2004). Differences between the activity size distributions of the different natural radionuclide aerosols in outdoor air. *Atmospheric Environment* 38, pp. 3723-3728.
- Hernández F, Alonso-Pérez S, Hernández-Armas J, Cuevas E, Karlsson L and Romero-Campos P M (2005). Influence of major African dust intrusions on the ^{137}Cs and ^{40}K activities in the lower

- atmosphere at the Island of Tenerife. *Atmospheric Environment* 39, pp. 4111-4118.
- Hinds W C (1982). *Aerosol Technology. Properties, behavior, and measurement of airborne particles*. Editor: John Wiley & sons, Inc.
- Hötzl H, Winkler R (1996). The ratio of long-lived to short-lived ^{222}Rn progeny concentrations in ground-level air. *The Science of the Total Environment* 181, pp. 249-255.
- Hurtgen C, Jerome S, Woods M (2000). Revisiting Currie - how long can you go?. *Applied Radiation and Isotopes*, volume 53, issues 1-2, pp. 45-50.
- IAEA (2004). Naturally occurring radioactive materials (NORM IV). Proceedings of an international conference held in Szczyrk, Poland. IAEA-Tecdoc-1472.
- IAEA (2006). Environmental consequences of the chernobyl accident and their remediation: twenty years of experience. Report of the Chernobyl Forum Expert Group "Environment". Radiological assessment reports series.
- ICRP (1993). Protection against Radon-222 at Home and at Work. ICRP Publication 65. *Ann. ICRP* 23 (2).
- Ioannidou A, Manolopoulou M, Papastefanou C (2005). Temporal changes of ^7Be and ^{210}Pb concentrations in surface air at temperate latitudes (40° N). *Applied Radiation and Isotopes* 63, pp. 277-284.
- Jorba, O (2005). Simulación de los campos de viento de la Península Ibérica y el área geográfica de Cataluña con alta resolución espacial para distintas situaciones meteorológicas típicas. Tesis Doctoral UPC.
- Karlsson L, Hernandez F, Rodríguez S, López-Pérez M, Hernández-Armas J, Alonso-Pérez S and Cuevas E (2008). Using ^{137}Cs and ^{40}K to identify natural Saharan dust contributions to PM₁₀ concentrations and air quality impairment in the Canary Islands. *Atmospheric Environment*. Volume 42, Issue 30, pp. 7034-7042
- Kim K P, Wu C-Y, Birky B, Nall W, Bolch W (2006). Characterization of radioactive aerosols in Florida. Phosphate processing facilities. *Aerosol Science and Technology*, 40, pp. 410-421.
- Knut R H, Knutson E O, Feely H W, Volchok H L (1983). Size distribution of atmospheric Pb and ^{210}Pb in rural New Jersey: Implications for wet and dry deposition. In *Precipitation Scavenging, Dry Deposition and Resuspension*, ed. H.R. Pruppacher, R.G. Semonin, W.G.N. Slinn. Elsevier Science Publishers, New York, pp. 1325-1335.
- Kownacka L (2002). Vertical distributions of ^7Be and ^{210}Pb in the tropospheric and lower stratospheric air. *Nukleonika* vol 42(2), pp. 79-82.
- Kownacka L, Jaworoski Z and Suplinska M (1990). Vertical distribution and flows of lead and natural radionuclides in the atmosphere. *The Science of the Total Environment*, 91, pp. 199-221.
- Lambert G, Ardouin B, Mesbah-Bendezu A (1983). Atmosphere to snow transfers in Antarctica. In *Precipitation Scavenging, Dry Deposition and Resuspension*, ed. H.R. Pruppacher, R.G. Semonin, W.G.N. Slinn. Elsevier Science Publishers, New York, pp. 1289-1300.
- Lozano R L, San Miguel E G, Bolívar J P (2011). Assessment of the influence of in situ ^{210}Bi in the calculation of in situ ^{210}Po in air aerosols: Implications on residence time calculations using $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ activity ratios. *Journal of Geophysical Research*, vol. 116, D08206.

- Llaurado M, Torres J M, Tent J, Sahuquillo A, Muntau H, Rauret G (2001). Preparation of a soil reference material for the determination of radionuclides. *Analytica Chimica Acta*, 445, pp. 99-106.
- Llaurado M, Vidal M, Rauret G, Roca C, Fons J, Vallejo V R (1994). Radiocaesium behaviour in mediterranean conditions. *Journal of Environmental Radioactivity* 23, pp. 81-100.
- Marcazzan G M, Caprioli E, Valli G and Vecchi R (2003). Temporal variation of ^{212}Pb concentration in outdoor air of Milan and a comparison with ^{214}Bi . *Journal of Environmental Radioactivity* Volume 65, Issue 1, pp. 77-90.
- Marcazzan G M, Caprioli E, Valli G, Vecchi R (2003). Temporal variation of ^{210}Pb concentration in outdoor air of Milan and a comparison with ^{214}Bi . *Journal of Environmental Radioactivity* 65, pp. 77-90.
- María del Mar Sorribas Panero (2007). Medida y caracterización del aerosol atmosférico en un ambiente rural y costero del suroeste de Europa. La distribución numérica de tamaños en el rango sub-micrométrico. Tesis Doctoral INTA.
- Marley N A, Gaffney J S, Drayton P J, Cunningham M M, Orlandini K A, Paode R (2000). Measurement of ^{210}Pb , ^{210}Po and ^{210}Bi in size-fractionated atmospheric aerosols: an estimate of fine-aerosols residence times. *Aerosol science and technology* 32, pp. 569-583.
- Masson O, Baeza A, Bieringer J, Brudecki K, Bucci S, Cappai M, Carvalho F P, Connan O, Cosma C, Dalheimer A, Didier D, Depuydt G, De Geer L E, De Vismes A, Gini L, Groppi F, Gudnason K, Gurriaran R, Hainz D, Halldorsson O, Hammond D, Hanley O, Holey K, Homoki Zs, Ioannidou A, Isajenko K, Jankovic M, Katzlberger C, Kettunen M, Kierepko R, Kontro R, Kwakman PJM, Lecomte M, Leon Vintro L, Leppänen A P, Lind B, Lujaniene G, Mc Ginnity P, Mc Mahon C, Mala H, Manenti S, Manolopoulou M, Mattila A, Mauring A, Mietelski J W, Miller B, Nielsen S P, Nikolic J, Overwater R M W, Palsson S E, Papastefanou C, Penev I, Pham M K, Povinec P P, Ramebäck H, Reis M C, Ringer W, Rodriguez A, Rulik P, Saey P R J, Samsonov V, Schlosser C, Sgorbati G, Silobritiene B V, Söderström C, Sogni R, Solier L, Sonck M, Steinhauser G, Steinkopff T, Steinmann P, Stoulos S, Sykora I, Todorovic D, Tooloutalaie N, Tositti L, Tschiersch J, Ugron A, Vagena E, Vargas A, Wershofen H, Zhukova O (2011). Tracking of Airborne Radionuclides from the damaged Fukushima Dai-ichi nuclear reactors by European networks. *Environmental Science Technology*, 45(18), pp. 7670-7677.
- Mattews K M, Kim C K, Martin P (2007). Determination of ^{210}Po in environmental materials: a review of analytical methodology. *Applied Radiation and Isotopes* 65, pp. 267-279.
- McMahon T A, Denison P J (1979). Empirical atmospheric deposition parameters: a survey. *Atmospheric environment* 13, pp. 571-585.
- McMurry P H and Wilson J C (1982). Growth laws for the formation of secondary ambient aerosols: implications for chemical conversion mechanisms. *Atmospheric Environment* vol. 16 no. 1, pp. 121-134.
- McNeary D, Baskaran M (2003). Depositional characteristics of ^7Be and ^{210}Pb in southeastern Michigan. *Journal of Geophysical Research*, 108, pp. 4210-4224.
- Ming-Chi H, Shiang-Huei J (2004). In situ measurements of gamma-ray intensity from radon progeny in rainwater. *Radiation measurements* 38, pp. 23-30.
- Mohamed A, El-Hussein A (2005). Comparison of outdoor activity size distributions of ^{220}Rn and ^{222}Rn progeny. *Applied radiation and isotopes* 62, pp. 955-959.

- Moore HE, Poet SE, Martell EA (1972). Tropospheric aerosol residence times indicated by radon and radon-daughter concentrations. *Natural Radiation Environment II*. CONF-720805-P2. Technical Information Center/US Department of Energy, Washington, DC, pp. 775-786.
- Newstein H, Cohen LD, Krablin R (1971). An automated atmospheric radon sampling system. *Atmospheric Environment Pergamon Press*, vol 5, pp. 823-831.
- Nicholson KW (1988). A review of particle resuspension. *Atmospheric Environment* vol. 22, no. 12, pp. 2639-2651.
- Nicholson KW (1988). The dry deposition of small particles: a review of experimental measurements. *Atmospheric environment* vol. 22, no. 12, pp. 2653-2666.
- O'Brien K (1979). Secular variations in the production of cosmogenic isotopes in the earth's atmosphere. *Journal of Geophysical Research*, vol. 84, no. A2, pp. 423-431.
- Ovadnevaitè J, Kvietkus, Sakalys J (2007). Evaluation of the impact of long-range transport and aerosol concentration temporal variations at the eastern coast of the Baltic Sea. *Environmental Monitoring and Assessment*, vol. 132, pp. 365-375.
- Paatero J (2000). Wet deposition of ^{222}Rn progeny in northern Finland measured with an automatic precipitation gamma analyser. *Radiation Protection Dosimetry*, vol. 87, no. 4, pp. 273-280.
- Papastefanou C (2006). Radioactive nuclides as tracers of environmental processes. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, vol. 267, no 2, pp. 315-320.
- Papastefanou C (2006). Residence time of tropospheric aerosols in association with radioactive nuclides. *Applied Radiation and Isotopes* 64, pp. 93-100.
- Papastefanou C (2008). Radioactive aerosols. *Radioactivity in the environment*, vol. 12. Series Editor: M.S. Baxter.
- Papastefanou C (2010). Paths of air pollutants containing radioactive nuclides in the suburban area of Thessaloniki, Northern Greece. *Aerosol and Air Quality Research* 10, pp. 354-359.
- Papastefanou C and Ioannidou (2004) A. Beryllium-7 and solar activity. *Applied Radiation and Isotopes*, Volume 61, Issue 6, pp. 1493-1495.
- Papastefanou C and Ioannidou A (1991). Depositional fluxes and other physical characteristics of atmospheric beryllium-7 in the temperate zones (40°N) with a dry (precipitation-free) climate. *Atmospheric Environment* vol 25A, no 10, pp. 2335-2343.
- Papastefanou C and Ioannidou A (1995). Aerodynamic size association of ^7Be in ambient aerosols. *Journal of Environmental Radioactivity* 26, pp. 273-282.
- Papastefanou C, Manolopoulou M, Stoulos S, Ioannidou A, Gerasopoulos E (2001). Coloured rain dust from Sahara Desert is still radioactive. *Journal of Environmental Radioactivity* 55, pp. 109-112.
- Papastefanou C and Bondietti EA (1991). Mean residence times of atmospheric aerosols in the boundary layer as determined from $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ activity ratios. *Journal of aerosol sciences*, vol 22, no 7, pp. 927-931.
- Pasquill F (1961). The estimation of the dispersion of windborne material. *The Meteorological Magazine*, vol 90, no. 1063, pp. 33-49.
- Peirson DH, Cambray RS (1965). Fission product fallout from the nuclear explosions of 1961 and 1962. *Nature* 205, pp. 433-440.

- Peirson D H, Cambray R S, Spicer G S (1966). ^{210}Pb and ^{210}Po in the atmosphere. *Int. J. Air Pollut.* 3, pp. 63-68.
- Peirson D H, Keane J R (1962). Characteristics of early fallout from the Russian nuclear explosions of 1961. *Nature* 196, 801-807.
- Porstendorfer J (1994). Properties and behaviour of radon and thoron in their decay products in the air. *J. Aerosol Science* no 2, pp 219-263.
- Porstendörfer J, Zock Ch and Reineking A (2000). Aerosol size distribution of the radon progeny in outdoor air. *Journal of Environmental Radioactivity*, 51, issue 1, pp. 37-48.
- Prakasa Rao P S, Khemani L T, Momin G A, Safai P D, Pillai A G (1992). Measurements of wet and dry deposition at an urban location in India. *Atmospheric Environment*, vo. 26B, no. 1, pp. 73-78.
- Quindós L, Fernández P L, Gómez J, Ródenas C, Sainz J, Martín Matarranz J L, Arteche J (2003). Natural radiation exposure in the vicinity of spanish nuclear power stations. *Health Physics*, 85 (5), pp. 594-598.
- Quindós L, Fernández P, Soto J, Ródenas C, Gómez J (1994). Natural radioactivity in spanish soils. *Health physics* 66, pp. 194-200.
- Rangarajan C (1992). A study of the mean residence time of the natural radioactive aerosols in the planetary boundary layer. *Journal of Environmental Radioactivity* 15, pp. 193-206.
- Rangarajan C, Eapen C D, Gopalakrishnan S (1986). Measured values of the dry deposition velocities of atmospheric aerosols carrying natural and fallout radionuclides using artificial collectors. *Water, air and soil pollution* 27, pp. 305-313.
- Reineking A, Becker K H, Porstendorfer J (1988). Distributions of the short-lived radon daughters in the indoor and outdoor environment. *Radiation Protection Dosimetry*. Vol. 24. No. 1/4 pp. 245-250.
- Roed J (1987). Dry deposition in rural and in urban areas in Denmark. *Radiation Protection Dosimetry*, vo. 21, no. 1/3, pp. 33-36.
- Rosner G, Hötzl H, Winkler R (1996). Continuous wet-only and dry-only deposition measurements of ^{137}Cs and ^7Be : an indicator of their origin. *Applied Radiation and Isotopes*. Vol 47, n. 9/10, pp. 1135-1139.
- Roussel-Debel S, Renaud P, Métivier J-M (2007). ^{137}Cs in French soils: Deposition patterns and 15-year evolution. *Science of the Total Environmen* 374, pp. 388-398.
- Sauret N, Wortham H, Streckowski R, Herckès P, Nieto L I (2009). Comparison of annual dry and wet deposition fluxes of selected pesticides ini Strasbourg, France. *Environmental Pollution* 157, pp. 303-312.
- Schmidt V, Hamel P (2001). Measurements of deposition velocity of radon decay products for examination of the correlation between air activity concentration of radon and the accumulated ^{210}Po surface activity. *The Science of the Total Environment* 272, pp. 189-194.
- Sehmel A G (1980). Particle and gas dry deposition: a review. *Atmospheric Environment*, vol. 14, pp. 983-1011
- Silva A A (2007). Seasonal variations of ^{214}Pb and ^{210}Po concentrations in the surface air in Sao José dos Campos (23.18° S, 45.89° W, 600 m asl) Brazil. *Atmospheric Research*. Volume 86, Issue 1, pp.

88-92.

Stohl A, Seibert P, Wotawa G, Arnold D, Burkhardt JF, Eckhardt S, Tapia C, Vargas A, Yasunari TJ (2011). Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: Determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, vol. 11, pp. 28319-28394.

Todd J F, Wong G T F, Olsen C R, Larsen I L (1989). Atmospheric depositional characteristics of ^7Be and ^{210}Pb along southeastern Virginia coast. *Journal of Geophysical Research* 94, pp. 11106-11116.

UNSCEAR (2000). Report of the United Nations Scientific Committee on the effects of atomic radiation. New York. United Nations.

UNSCEAR (2008). Sources and effects of ionizing radiation. Report to the General Assembly with Scientific Anexes. New York. United Nations.

Valles I, Camacho A, Ortega X, Serrano I, Blázquez S and Pérez S (2009). Natural and anthropogenic radionuclides in airborne particulate samples collected in Barcelona (Spain). *Journal of Environmental Radioactivity* 100, pp. 102-107.

Vargas A (2000). Contribución a la caracterización de aerosoles radiactivos derivados del radón. Tesis Doctoral UPC.

Vargas A, Arnold D, Ortega X and Parages C (2008). Influence of natural radioactive aerosols on artificial radioactivity detection in the Spanish surveillance networks. *Applied Radiation and Isotopes* 66, pp. 1627-1631.

Vargas A, Michielsen N, Le Moing C, Rio M, Tymen G, Ortega X (2005). Determination of ^{218}Po nanometer size distribution in a controlled environment by two new systems. *Radioactivity in the environment* volume 7, pp. 361-370.

Vargas A, Ortega X, Cortés G, Bonet J (2004). Response of a radioactive aerosol monitor to radon progeny concentration. IRPA 11-ABSTRACTS. Eds Senda editorial, S.L., pp. 246-246.

Vecchi R, Marcazzan G, Valli G (2005). Seasonal variation of ^{210}Pb activity concentration in outdoor air of Milan (Italy). *Journal of Environmental Radioactivity* Vol 82, Issue 2, pp. 251-266

Wershofen H and Arnold D (2005). Radionuclides in Ground-level Air in Braunschweig. Report of the PTB Tracey Survey Station from 1998 to 2003.

Winkler R, Dietl F, Frank G and Tschiersch J (1998). Temporal variation of ^7Be and ^{210}Pb size distributions in ambient aerosol. *Atmospheric Environment* Vol. 32, no. 6, pp. 983-991.

Winkler R, Rosner G (2000). Seasonal and long-term variation of ^{210}Pb concentration in air, atmospheric deposition rate and total deposition velocity in south Germany. *The Science of the Total Environment* 263, pp. 57-68.

Zähringer M, Bieringer J, Schlosser C (2008). Three years of operational experience from Schauinsland CTBT monitoring station. *Journal of Environmental Radioactivity* 99, pp. 596-606.

Parte VI

Apéndices

A Resolución de las ecuaciones de los radionucleidos medidos en el INTE

A.1 Introducción

La expresión básica que describe el comportamiento de los radionucleidos atmosféricos captados mediante los equipos de muestreo de aerosoles es la siguiente:

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \frac{F_i}{\lambda_i} - \lambda_i N_i(t) \quad (14)$$

donde $N_i(t)$ es el número de átomos del radionucleido i en función del tiempo, λ_i la constante de semidesintegración en s^{-1} y F_i es el flujo de deposición de recolección del radionucleido en el sistema de captación de aerosoles. Si el equipo actúa con una bomba de aspiración de aire, este término vendrá dado por $F_i = Q.C_i$, siendo Q el caudal de la bomba en m^3/s , y C_i la concentración del radionucleido, en Bq/m^3 . En caso de que el equipo no tome muestras mediante bomba de aspiración sino por deposición, el flujo vendrá dado por $F_i = v_{d,i}.C_i.S$ donde $v_{d,i}$ es la velocidad de deposición en m/s y S la superficie del filtro en m^2 . A partir de esta ecuación se analizarán las diferentes situaciones que se dan para los isótopos estudiados con cada uno de los equipos utilizados en el INTE.

A.2 Ecuaciones relativas al monitor de aerosoles radiactivos de medida en continuo

Las cuentas alfa y beta detectadas mediante el monitor de aerosoles radiactivos en continuo Berthold vienen determinadas por las expresiones:

$$n_\alpha = n_{nat,\alpha} + n_{arti,\alpha} + n_{back,\alpha} \quad (15)$$

$$n_\beta = n_{nat,\beta} + n_{arti,\beta} + n_{back,\beta} \quad (16)$$

Siendo $n_{nat,\alpha}$ y $n_{nat,\beta}$ las partículas alfa o beta emitidas por los radionucleidos descendientes del ^{222}Rn , $n_{arti,\alpha}$ y $n_{arti,\beta}$ los radionucleidos artificiales de desintegración α y β medidos por el detector, y $n_{back,\alpha}$ y $n_{back,\beta}$ las desintegraciones α y β medidas debidas al fondo del monitor.

Para el cálculo de las $n_{nat,\alpha}$ y $n_{nat,\beta}$, el monitor puede distinguir las partículas alfa y beta que provienen de los descendientes del ^{222}Rn del resto de partículas alfa y beta mediante el método de pseudo-coincidencia diferencial alfa-beta (método ABPD). Este método se basa en el hecho de

que la desintegración beta del ^{214}Bi está inmediatamente seguida por la desintegración alfa del ^{214}Po ($T_{1/2}=163.69 \mu\text{s}$) en la cadena de desintegración del ^{222}Rn . De este modo es posible distinguir las emisiones beta y alfa de origen natural (descendientes del ^{222}Rn) de las emisiones debidas a radionucleidos de origen artificial, cuando el dispositivo de medida detecta simultáneamente una partícula alfa y una partícula beta. Así, si se mantiene el equilibrio en las actividades de los descendientes del ^{222}Rn se puede conocer el número de cuentas α y β que se deben a las desintegraciones naturales, multiplicando las pseudocoincidencias por sus correspondientes ratios α y β . Estos ratios α y β se calculan en un momento en el que sabemos que en la atmósfera no existen radionucleidos de origen artificial. Así, las cuentas α y β artificiales se obtienen despejando las expresiones 15 y 16, obteniendo las ecuaciones:

$$n_{art,\alpha} = n_{\alpha} - ratio_{\alpha} \cdot ps_{\alpha} - n_{back,\alpha} \quad (17)$$

$$n_{art,\beta} = n_{\beta} - ratio_{\beta} \cdot ps_{\beta} - n_{back,\beta} \quad (18)$$

Donde ps representa la tasa de pseudocoincidencias en cps y los ratios representan la tasa de cuentas total α o β en relación con las pseudocoincidencias.

Por tanto, las expresiones usadas para el cálculo del ratio en ausencia de radionucleidos de origen artificial en la atmósfera, son:

$$ratio_{\alpha} = \frac{n_{\alpha} - n_{back,\alpha}}{ps_{\alpha}} \quad (19)$$

$$ratio_{\beta} = \frac{n_{\beta} - n_{back,\beta}}{ps_{\beta}} \quad (20)$$

Dicho ratio se obtiene midiendo su valor al menos 2 días poder disponer de un valor medio. Los valores obtenidos son $ratio_{\alpha} = 7.834$ y $ratio_{\beta} = 15.509$. Los valores de las cuentas debidas al fondo del monitor se obtuvieron midiendo durante un día con el filtro limpio y la bomba desactivada, dando como resultado $n_{back,\alpha} = 0.00238$ cps y $n_{back,\beta} = 0.43834$ cps.

La evolución temporal de la actividad superficial depositada en el filtro debida a radionucleidos emisores de radiación i , $A_i(t)$, dependerá de la velocidad de desplazamiento V , del flujo de aire Q , de la longitud del filtro L y de la concentración de actividad C_i debido al radionucleido i . A la expresión 14 se le añade un término relativo al desplazamiento del filtro, obteniéndose en este caso:

$$\frac{dA_i(t)}{dt} = Q \cdot C_i - \lambda_i \cdot A_i(t) - 2 \cdot \frac{V}{L} \cdot A_i(t) \quad (21)$$

La solución de la ecuación anterior con la condición inicial de que para $t=0$, $A(0)=0$, es:

$$A_i(t) = \frac{QC_i}{\lambda_i + \frac{2V}{L}} (1 - e^{-(\lambda_i + \frac{2V}{L})t}) \quad (22)$$

En el caso de $t=\infty$:

$$A_i(\infty) = \frac{QC_i}{\lambda'_i} \quad (23)$$

con $\lambda'_i = \lambda_i + \frac{2V}{L}$.

y el número de cuentas detectadas n_i debidas al radionucleido i , suponiendo que se ha alcanzado el equilibrio en el filtro en el caso de los descendientes de vida corta, vendrá expresado como:

$$n_i = \epsilon_{(\alpha,\beta)i} F_{icare(\alpha,\beta)i} \int_t^{t+t_m} A_i(t) dt = \epsilon_{(\alpha,\beta)i} F_{icare(\alpha,\beta)i} \frac{QC_i}{\lambda'_i} t_m \quad (24)$$

$F_{icare(\alpha,\beta)i}$ representa el ratio de partículas α y β que son autoabsorbidas por el filtro. Según el fabricante estos valores son $F_{icare,\alpha} = 0.839$ y $F_{icare,\beta} = 0.976$. $\epsilon_{\alpha,\beta}$ es la eficiencia o número de partículas α y β que se detectan respecto a las que se desintegran en el filtro. Los valores obtenidos mediante el uso de fuentes electrodepositadas calibradas de ^{241}Am y ^{39}Cl fueron $\epsilon_\alpha = 0.180$ y $\epsilon_\beta = 0.206$. Finalmente, t es la variable temporal y t_m el tiempo de medida en segundos.

Por tanto la relación entre la concentración y las cuentas por segundo será:

$$C_i = \frac{\lambda'_i}{\epsilon_{\alpha,\beta,i} F_{icare,\alpha,\beta,i} Q} \frac{n_i}{t_m} \quad (25)$$

En esta ecuación, para los aerosoles artificiales, n_i se obtiene de las ecuaciones 17 y 18. En el caso de los descendientes de ^{222}Rn , $n_{nat} = ps - n_{back}$

Se define el factor de calibración, F_{cal} , como los Bq/m³ por cps. Así, en este caso:

$$F_{cal} = \frac{\lambda + \frac{2V}{L}}{\epsilon_{\alpha,\beta} F_{icare,\alpha,\beta} Q} \quad (26)$$

A partir de esta expresión se pueden usar dos aproximaciones:

1) En el caso de que el radionucleido sea de vida larga, se cumple que $\lambda \ll 2V/L$. La expresión que resulta es:

$$F_{cal} = \frac{2V}{L} \frac{1}{\epsilon_{\alpha,\beta} F_{icare,\alpha,\beta} Q} \quad (27)$$

Los valores calculados son $F_{cal,art,\alpha} = 0.1835$ Bq/m³ por cps y $F_{cal,art,\beta} = 0.1368$ Bq/m³ por cps.

A pesar de que para el radón no se cumple que $\lambda \ll 2V/L$, ya que $\lambda = \frac{\ln 2}{0.66h} = 1.05 \text{ h}^{-1}$ y $2V/L$ tiene un valor de 0.4 h^{-1} , el fabricante aplica esta misma expresión para los descendientes de ^{222}Rn , con un valor de eficiencia específico calculado según la expresión 28, de valor $\epsilon_{Rn-P} = 0.076$, y que ofrece un valor de factor de calibración de 4.79 Bq/m^3 por cps.

$$\epsilon_{Rn-P} = \frac{ps}{n_{nat}} = \frac{1}{\frac{ratio_{\alpha}}{\epsilon_{\alpha}} + \frac{ratio_{\beta}}{\epsilon_{\beta}}} \quad (28)$$

2) En el caso de que el aerosol sea de vida corta, se cumple que $\lambda \gg 2V/L$. La expresión resultante para el factor de calibración es:

$$F_{cal} = \frac{1}{QF_{icare}\epsilon} \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \quad (29)$$

Para el cálculo relativo a los descendientes del ^{222}Rn , no se cumple que $\lambda \gg 2V/L$. Por tanto, una mejora que se introdujo en el proceso de estimación del factor de calibración consistió en la resolución de las ecuaciones diferenciales de la evolución del número de átomos de los descendientes de ^{222}Rn en el filtro. Los recuentos que se deben considerar para los descendientes de ^{222}Rn en acuerdo con su cadena de desintegración son:

$$\frac{dN_{218Po}(t)}{dt} = Q \frac{C_{218Po}}{\lambda_{218Po}} - \lambda_{218Po} N_{218Po}(t) - 2 \frac{V}{L} N_{218Po}(t) \quad (30)$$

$$\frac{dN_{214Pb}(t)}{dt} = Q \frac{C_{214Pb}}{\lambda_{214Pb}} - \lambda_{214Pb} N_{214Pb}(t) - 2 \frac{V}{L} N_{214Pb}(t) + \lambda_{218Po} N_{218Po}(t) \quad (31)$$

$$\frac{dN_{214Bi}(t)}{dt} = Q \frac{C_{214Bi}}{\lambda_{214Bi}} - \lambda_{214Bi} N_{214Bi}(t) - 2 \frac{V}{L} N_{214Bi}(t) + \lambda_{214Pb} N_{214Pb}(t) \quad (32)$$

donde Q es el caudal, V es la velocidad del filtro, L es la longitud del filtro enfrentada al detector, y C_{218Po} , C_{214Pb} y C_{214Bi} la concentración de descendientes de ^{222}Rn , en Bq/m^3 .

La tasa de recuento de pseudocoincidencias que se detectan viene determinado por la siguiente expresión:

$$ps(cps) = \frac{\epsilon_{ps} \lambda_{214Bi} \int_0^T N_{214Bi}(t) dt}{T} \quad (33)$$

Donde:

T es el período de medida en segundos.

$\epsilon_{ps} = \epsilon_{\alpha} \cdot F_{icare\alpha} \cdot \epsilon_{\beta} \cdot F_{icare\beta} \cdot f$, de valor 0.021.

ϵ_{α} es la eficiencia alfa, de valor 0.180

ϵ_{β} es la eficiencia beta, de valor 0.206

$F_{icare\alpha}$ es el factor de ícare alfa, de valor 0.839

$F_{icare\beta}$ es el factor de ícare beta, de valor 0.976

f es la probabilidad de que ocurra una desintegración alfa del ^{214}Po después de una desintegración beta del ^{214}Bi , en un tiempo igual o inferior a $200 \mu\text{s}$, ya que el sistema de detección de pseudocoincidencias

se ha programado para que permita la detección dentro de un tiempo de 200 μ s. Su valor es de 0.581

Suponiendo una situación de equilibrio ($\frac{dN(t)}{dt} = 0$) y de equilibrio entre descendientes ($C_{218Po} = C_{214Pb} = C_{214Bi} = C$), se obtiene la relación:

$$C = \frac{ps \cdot \lambda'_{214Bi}}{\epsilon_{ps} \cdot Q \cdot \lambda_{214Bi}} \left(\frac{1}{\lambda_{214Bi}} + \frac{\lambda_{214Pb}}{\lambda'_{214Pb}} \left(\frac{1}{\lambda_{214Pb}} + \frac{1}{\lambda'_{218Po}} \right) \right)^{-1} \quad (34)$$

donde $\lambda'_i = \lambda_i + 2 \frac{V}{L}$ (con $i = {}^{218}Po, {}^{214}Pb, {}^{214}Bi$).

Siendo por tanto el factor de calibración en este caso:

$$F_{cal} = \frac{\lambda'_{214Bi}}{\epsilon_{ps} \cdot \lambda_{214Bi}} \left(\frac{1}{\lambda_{214Bi}} + \frac{\lambda_{214Pb}}{\lambda'_{214Pb}} \left(\frac{1}{\lambda_{214Pb}} + \frac{1}{\lambda'_{218Po}} \right) \right)^{-1} \quad (35)$$

con un resultado de $F_{cal,desc.rad.} = 4.51 \text{ Bq/m}^3$ por cps, que coincide con el indicado por el fabricante.

A.3 Ecuaciones relativas al equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volúmen

Existen tres fases propias del proceso de medida de aerosoles radiactivos atmosféricos mediante este equipo. En la primera de ellas el filtro se encuentra expuesto recogiendo partículas mediante el uso de una bomba de aspiración de alto caudal en el caso del equipo de alto volúmen. Por tanto, tal y como se ha indicado en el apartado A.1, el flujo vendrá dado por la expresión $F_i = Q \cdot C_i$, siendo Q el caudal de la bomba y C_i la concentración del radionucleido. Durante la segunda fase, el filtro ha sido ya retirado del equipo de muestreo, encontrándose almacenado a la espera de que se realice el análisis del mismo. En la tercera fase, el filtro se encuentra en el sistema de detección y se realiza el análisis del mismo para conocer la actividad presente en él.

Fase 1. El filtro se encuentra en el período de exposición.

La solución de la ecuación 14 con la condición inicial de $A(0) = 0$ ya que para $t=0$ la actividad es nula en el filtro. La solución adopta una expresión de la forma:

$$A(t) = \frac{QC}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (36)$$

Fase 2. Tiempo de espera desde que se retira el filtro del equipo hasta que se comienza a realizar el análisis del mismo. En este caso no existe flujo de partículas depositándose sobre el filtro, y la actividad A_d en el filtro sigue la siguiente ecuación diferencial:

$$\frac{dA_d(t)}{dt} = -\lambda A_d(t) \quad (37)$$

Siendo t_s el tiempo de exposición a partir del cual se retira el filtro para ser analizado, la condición inicial que tendremos en esta fase será $A_d(0)=A(t_s)$. La solución es en este caso:

$$A_d(t) = A(t_s)e^{\lambda t} = \frac{QC}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t_s})e^{-\lambda t} \quad (38)$$

En la figura 102 se observa la representación de la evolución temporal de actividad de ^7Be en un muestreo típico de una semana del equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volúmen para una concentración en el aire de ^7Be de $4 \cdot 10^{-3} \text{ Bq/m}^3$ y un caudal de $600 \text{ m}^3/\text{h}$.

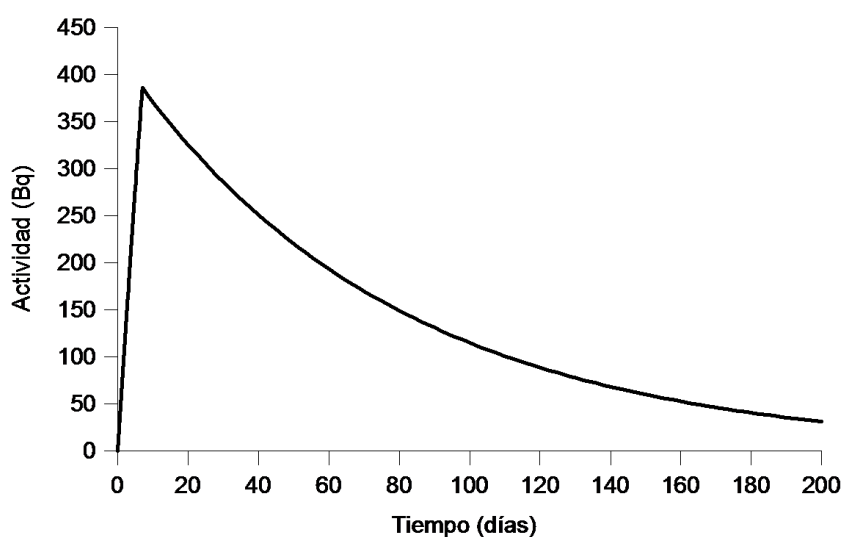


Figura 102: Esquema de la evolución de la actividad de ^7Be en el filtro del equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volúmen

En el caso particular del radionucleido ^{210}Pb , debido a su largo período de semidesintegración, la actividad en esta fase puede simplificarse con la expresión:

$$\frac{dA_d(t)}{dt} = 0 \quad (39)$$

con la condición $A_d(0) = A(t_s)$, lo que indica un valor de actividad constante de valor $A(t_s)$.

En la figura 103 se muestra un ejemplo de la evolución temporal de actividad de ^{210}Pb en un muestreo típico de una semana del equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volúmen para una concentración en el aire de ^{210}Pb de $5 \cdot 10^{-4} \text{ Bq/m}^3$ y un caudal de $600 \text{ m}^3/\text{h}$.

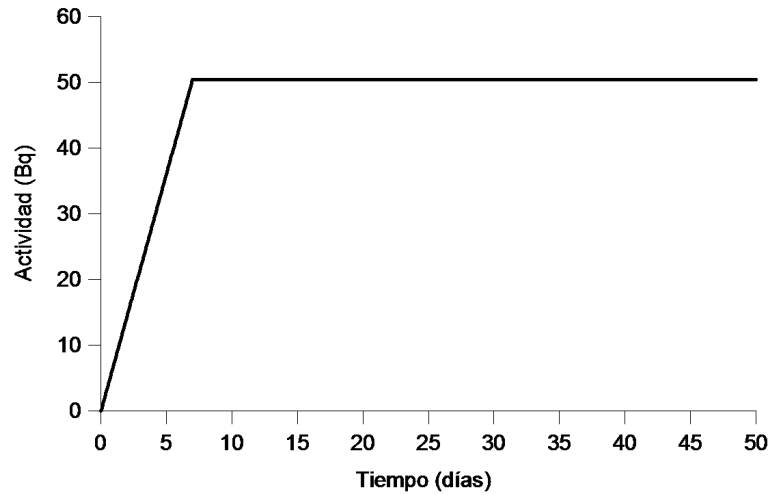


Figura 103: Esquema de la evolución de la actividad de ²¹⁰Pb en el filtro del equipo captador de aerosoles radiactivos de alto volumen

Fase 3. Durante el tiempo de recuento del filtro, el número de cuentas detectadas viene dado por la siguiente ecuación:

$$NC = \gamma \epsilon \int_{t_i}^{t_f} A_d(t) dt \quad (40)$$

donde ϵ es la eficiencia del detector para cada radionucleido, t_i es el tiempo en el cual comienza la medida de cuentas en el detector y t_f el tiempo en el cual se detiene el recuento. Por tanto, $t_f - t_i$ será el tiempo de recuento. γ es la abundancia o yield, que es la probabilidad de que la desintegración que sufre el radionucleido sea una desintegración gamma.

En el caso del ⁷Be, resolviendo la integral llegamos a la expresión:

$$NC = \frac{\gamma \epsilon QC}{\lambda^2} (1 - e^{-\lambda t_s}) (e^{-\lambda t_i} - e^{-\lambda t_f}) \quad (41)$$

Despejando la concentración de ⁷Be, obtendríamos:

$$C = \frac{NC \lambda^2}{\gamma \epsilon Q (1 - e^{-\lambda t_s}) (e^{-\lambda t_i} - e^{-\lambda t_f})} \quad (42)$$

Para el ²¹⁰Pb, aplicando la ecuación 40 obtenemos que el número de cuentas vendrá dado por:

$$NC = \gamma \epsilon Q C t_s (t_f - t_i) \quad (43)$$

Siendo por tanto la concentración de ^{210}Pb :

$$C = \frac{NC}{\gamma \epsilon Q t_s (t_f - t_i)} \quad (44)$$

A.4 Ecuaciones relativas al equipo medidor de deposición seca y húmeda de aerosoles radiactivos

La expresión que siguen los radionucleidos presentes en el filtro de deposición seca se corresponde con el valor de $F_i = v_{d,i} \cdot C_i \cdot S$ en la ecuación 14, siendo $v_{d,i}$ es la velocidad de deposición seca, C_i la concentración volumétrica del isótopo radiactivo en el aire y S la superficie del filtro. Por tanto, las ecuaciones seguidas en este caso son las desarrolladas en el apartado A.3.

En el proceso de recogida de radionucleidos mediante deposición húmeda se presentan dos fases. La primera de ellas es la recogida de agua de lluvia en la cubeta. Una vez la cubeta es retirada, tiene lugar la segunda fase consistente en la medida de actividad existente en el agua de lluvia recogida en la cubeta.

Durante la recogida agua de lluvia en la cubeta, la actividad del radionucleido i existente en el agua de lluvia vendrá dada por:

$$A_i(t) = A_i(0)e^{-\lambda t} \quad (45)$$

Donde $A_i(0)$ es la actividad del radionucleido i en el momento de su recogida en la cubeta.

Como ejemplo simple de la aproximación realizada para el cálculo de la actividad del radionucleido presente en el agua de lluvia recogida, supondremos 3 episodios de lluvia a lo largo de un periodo en el que se ha recogido agua en la cubeta, de manera que la evolución de su actividad es:

$$A_1(t) = A_{10}e^{-\lambda t_1} \quad (46)$$

$$A_2(t) = A_{20}e^{-\lambda t_2} \quad (47)$$

$$A_3(t) = A_{30}e^{-\lambda t_3} \quad (48)$$

Siendo A_{10} , A_{20} y A_{30} las actividades del agua de lluvia en el momento de su recogida en la cubeta, y t_1 , t_2 y t_3 son los tiempos transcurridos desde el día de lluvia hasta que se realiza el análisis del agua. En la figura 104 se observa gráficamente la evolución temporal de estas actividades.

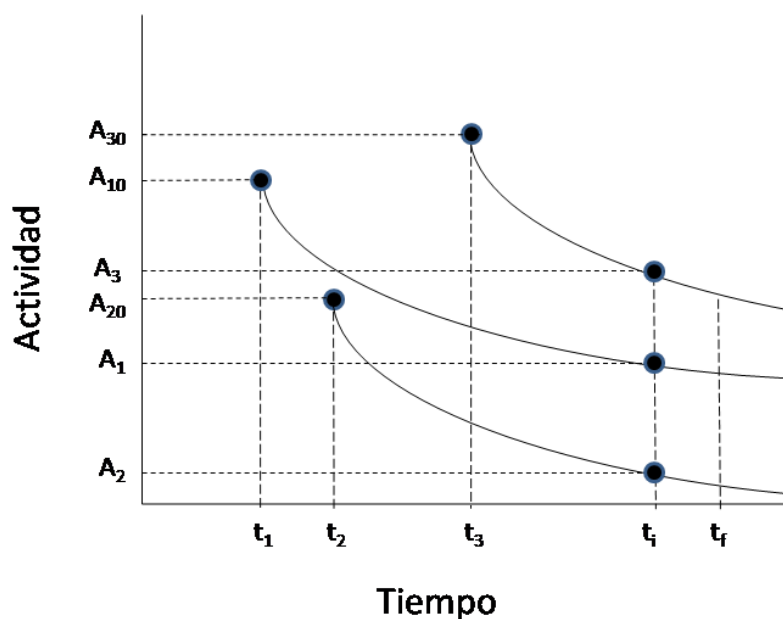


Figura 104: Esquema de la evolución de la actividad del agua de lluvia en la cubeta del equipo de deposición húmeda

En caso de no conocer si en alguno de los episodios de lluvia existe mayor radioactividad que en otro, se puede suponer que la actividad es similar para cada uno de los episodios ($A_{10} = A_{20} = A_{30} = A_0$). Podemos considerar que su actividad inicial dependerá del volúmen de agua recogida en ese episodio, y que por tanto:

$$A_{TOT}(t) = A_0 \left(\frac{v_1}{v_{TOT}} e^{-\lambda t_1} + \frac{v_2}{v_{TOT}} e^{-\lambda t_2} + \frac{v_3}{v_{TOT}} e^{-\lambda t_3} \right) \quad (49)$$

Siendo v_1, v_2, v_3 el volúmen de agua recogido cada uno de los días de lluvia, A_{TOT} la actividad total en la cubeta, y v_{TOT} el volúmen total recogido durante todo el mes. Los datos de lluvia recogida han sido obtenidos mediante el pluviómetro de la estación radiometeorológica del Campus Nord.

A.5 Ecuaciones relativas a la actividad en el agua de lluvia

Las expresiones de los descendientes de vida corta del ^{222}Rn en el agua de lluvia son las siguientes:

$$\frac{dA_{218\text{Po}}(t)}{dt} = -\lambda_{218\text{Po}} A_{218\text{Po}}(t) \quad (50)$$

$$\frac{dA_{214\text{Pb}}(t)}{dt} = \lambda_{214\text{Pb}} A_{218\text{Po}}(t) - \lambda_{214\text{Pb}} A_{214\text{Pb}}(t) \quad (51)$$

$$\frac{dA_{214Bi}(t)}{dt} = \lambda_{214Bi}A_{214Pb}(t) - \lambda_{214Bi}A_{214Bi}(t) \quad (52)$$

Suponiendo que en el momento en el cual se forma la nube tenemos una situación en que las actividades de los descendientes de vida corta del ^{222}Rn están en equilibrio ($A_{218Po} = A_{214Pb} = A_{214Bi} = A_c$), la resolución de las ecuaciones de evolución de actividad de los descendientes de vida corta del ^{222}Rn se muestran en las ecuaciones 53, 54 y 55. En la figura 105 se representa la evolución de los tres elementos con desde el momento en que se forma la gota con el radionucleido, así como la evolución del cociente $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$, para una $A_c = 1 \text{ Bq/L}$.

$$A_{218Po}(t) = A_c e^{-\lambda_{218Po}t} \quad (53)$$

$$A_{214Pb}(t) = A_c \frac{\lambda_{214Pb} e^{-\lambda_{218Po}t} - \lambda_{218Po} e^{-\lambda_{214Pb}t}}{\lambda_{214Pb} - \lambda_{218Po}} \quad (54)$$

$$A_{214Bi}(t) = \frac{A_c \lambda_{214Bi}}{\lambda_{214Pb} - \lambda_{218Po}} \left(\frac{\lambda_{214Pb}}{\lambda_{214Bi} - \lambda_{218Po}} (e^{-\lambda_{218Po}t} - e^{-\lambda_{214Bi}t}) + \frac{\lambda_{218Po}}{\lambda_{214Bi} - \lambda_{214Pb}} (e^{-\lambda_{214Bi}t} - e^{-\lambda_{214Pb}t}) \right) + A_c e^{-\lambda_{214Bi}t} \quad (55)$$

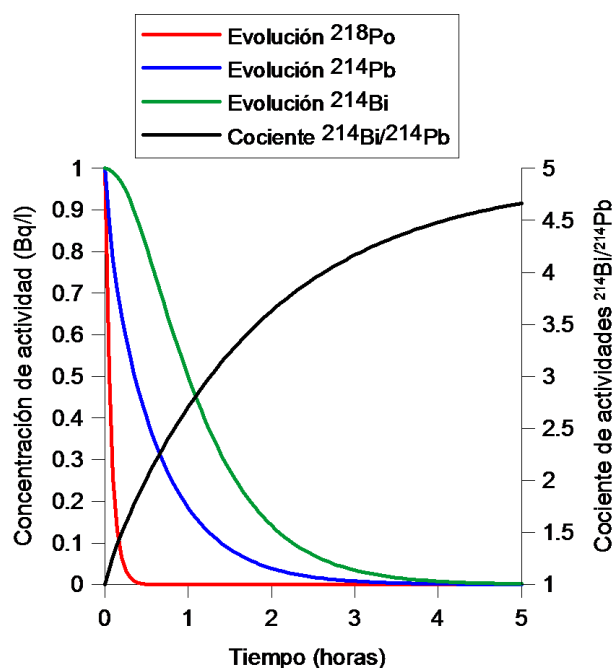


Figura 105: Evolución de la concentración de descendientes de ^{222}Rn y cociente de actividades $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ para una concentración inicial de 1 Bq/L para cada uno de los radionucleidos

A.6 Ecuaciones relativas al equipo para la medida del espectro dimensional de aerosoles radiactivos

Existen tres fases propias del proceso de medida de aerosoles radiactivos atmosféricos mediante este equipo. En la primera de ellas el filtro se encuentra expuesto recogiendo partículas mediante el uso de una bomba de aspiración. Durante la segunda fase, el filtro ha sido retirado del equipo de muestreo. Se encuentra almacenado a la espera de que se realice el análisis del mismo. En la tercera fase, el filtro se encuentra en el interior del equipo detector y se realiza el análisis del mismo para conocer la actividad presente en él.

Fase 1. El filtro se encuentra en el período de exposición. Aplicando la ecuación 14 en la cual tenemos una bomba aspirando aire, y por tanto $F_i = Q.C_i$, obtenemos las siguientes ecuaciones para cada uno de los descendientes de vida larga del ^{222}Rn

$$\frac{dN_{210Pb}(t)}{dt} = -\lambda_{210Pb}N_{210Pb}(t) + \frac{QC_{210Pb}}{\lambda_{210Pb}} \quad (56)$$

$$\frac{dN_{210Bi}(t)}{dt} = -\lambda_{210Bi}N_{210Bi}(t) + \lambda_{210Pb}N_{210Pb}(t) + \frac{QC_{210Bi}}{\lambda_{210Bi}} \quad (57)$$

$$\frac{dN_{210Po}(t)}{dt} = -\lambda_{210Po}N_{210Po}(t) + \lambda_{210Bi}N_{210Bi}(t) + \frac{QC_{210Po}}{\lambda_{210Po}} \quad (58)$$

Siendo la condición inicial $N_{210Pb} = N_{210Bi} = N_{210Po} = 0$ puesto que existe una actividad nula inicialmente en el filtro.

Las soluciones de estas ecuaciones son las siguientes:

$$A_{210Pb}(t) = K_{11}e^{-\lambda_{210Pb}t} + \frac{QC_{210Pb}}{\lambda_{210Pb}} \quad (59)$$

$$A_{210Bi}(t) = \frac{Q(C_{210Pb} + C_{210Bi})}{\lambda_{210Bi}} + K_{21}e^{-\lambda_{210Pb}t} + K_{22}e^{-\lambda_{210Bi}t} \quad (60)$$

$$A_{210Po}(t) = \frac{Q(C_{210Pb} + C_{210Bi} + C_{210Po})}{\lambda_{210Po}} + K_{31}e^{-\lambda_{210Pb}t} + K_{32}e^{-\lambda_{210Bi}t} + K_{33}e^{-\lambda_{210Po}t} \quad (61)$$

Siendo los valores de las constantes K_{11} , K_{21} , K_{22} , K_{31} , K_{32} y K_{33} las siguientes:

$$K_{11} = -\frac{QC_{210Pb}}{\lambda_{210Pb}} \quad (62)$$

$$K_{21} = -\frac{QC_{210Pb}}{\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb}} \quad (63)$$

$$K_{22} = -\frac{Q(C_{210Pb} + C_{210Bi})}{\lambda_{210Bi}} - \frac{QC_{210Pb}}{\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb}} \quad (64)$$

$$K_{31} = -\frac{QC_{210Pb}\lambda_{210Bi}}{(\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb})(\lambda_{210Po} - \lambda_{210Pb})} \quad (65)$$

$$K_{32} = \frac{Q(C_{210Pb} + C_{210Bi})}{\lambda_{210Po} - \lambda_{210Bi}} + \frac{QC_{210Pb}\lambda_{210Bi}}{(\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb})(\lambda_{210Po} - \lambda_{210Bi})} \quad (66)$$

$$K_{33} = \frac{Q(C_{210Pb} + C_{210Bi})}{\lambda_{210Po} - \lambda_{210Bi}} - \frac{QC_{210Pb}\lambda_{210Bi}}{(\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb})(\lambda_{210Po} - \lambda_{210Bi})} +$$

$$+ \frac{QC_{210Pb}\lambda_{210Bi}}{(\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb})(\lambda_{210Po} - \lambda_{210Pb})} - \frac{Q(C_{210Pb} + C_{210Bi} + C_{210Po})}{\lambda_{210Po}} \quad (67)$$

Fase 2. El filtro se encuentra en el período de espera para realizar el recuento, después de que la bomba haya estado aspirando aire durante un tiempo t_b . Aplicando la ecuación 14 en la cual no existe caudal, obtenemos las siguientes ecuaciones para cada uno de los descendientes de vida larga del ^{222}Rn :

$$\frac{dn_{210Pb}(t)}{dt} = -\lambda_{210Pb}n_{210Pb}(t) \quad (68)$$

con la condición inicial $n_{210Pb}(0) = N_{210Pb}(t_b)$

$$\frac{dn_{210Bi}(t)}{dt} = -\lambda_{210Bi}n_{210Bi}(t) + \lambda_{210Pb}n_{210Pb}(t) \quad (69)$$

con la condición inicial $n_{210Bi}(0) = N_{210Bi}(t_b)$

$$\frac{dn_{210Po}(t)}{dt} = -\lambda_{210Po}n_{210Po}(t) + \lambda_{210Bi}n_{210Bi}(t) \quad (70)$$

con la condición inicial $n_{210Po}(0) = N_{210Po}(t_b)$

Las soluciones de estas ecuaciones son las siguientes:

$$n_{210Pb}(t) = N_{210Pb}(t_b)e^{-\lambda_{210Pb}t} \quad (71)$$

$$n_{210Bi}(t) = M_{21}e^{-\lambda_{210Pb}t} + M_{22}e^{-\lambda_{210Bi}t} \quad (72)$$

$$n_{210Po}(t) = M_{31}e^{-\lambda_{210Pb}t} + M_{32}e^{-\lambda_{210Bi}t} + M_{33}e^{-\lambda_{210Po}t} \quad (73)$$

Siendo los valores de las constantes M_{21} y M_{22} , M_{31} , M_{32} y M_{33} las siguientes

$$M_{21} = \frac{\lambda_{210Pb}N_{210Pb}(t_b)}{\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb}} \quad (74)$$

$$M_{22} = N_{210Bi}(t_b) - \frac{\lambda_{210Pb}N_{210Pb}(t_b)}{\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb}} \quad (75)$$

$$M_{31} = N_{210Po}(t_b) - \frac{\lambda_{210Bi}N_{210Bi}(t_b)}{(\lambda_{210Po} - \lambda_{210Bi})} + \frac{\lambda_{210Bi}\lambda_{210Pb}N_{210Pb}(t_b)}{(\lambda_{210Po} - \lambda_{210Bi})(\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb})} - \frac{\lambda_{210Bi}\lambda_{210Pb}N_{210Pb}(t_b)}{(\lambda_{210Po} - \lambda_{210Pb})(\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb})} \quad (76)$$

$$M_{32} = \frac{\lambda_{210Bi}N_{210Bi}(t_b)}{\lambda_{210Po} - \lambda_{210Bi}} - \frac{\lambda_{210Bi}\lambda_{210Pb}N_{210Pb}(t_b)}{(\lambda_{210Po} - \lambda_{210Bi})(\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb})} \quad (77)$$

$$M_{33} = \frac{\lambda_{210Bi}\lambda_{210Pb}N_{210Pb}(t_b)}{(\lambda_{210Po} - \lambda_{210Pb})(\lambda_{210Bi} - \lambda_{210Pb})} \quad (78)$$

En la figura 106 se observa la representación gráfica de estas ecuaciones. Las concentraciones utilizadas corresponden a una concentración típica en el aire de ^{210}Pb del orden de 10^{-4} Bq/m³. Para la concentración en aire de ^{210}Bi hemos supuesto un ratio de $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ de valor 0.5 (Papastefanou et al., 2006). Respecto a la concentración en aire de ^{210}Po se ha utilizado un ratio de $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ de valor 0.07 (Moore et al., 1972). La fase 1 corresponde a los primeros 15 días. Durante la fase 2, el ^{210}Pb y ^{210}Bi tienden al equilibrio. El ^{210}Po presenta una tendencia ascendente aunque con un valor de actividad más bajo.

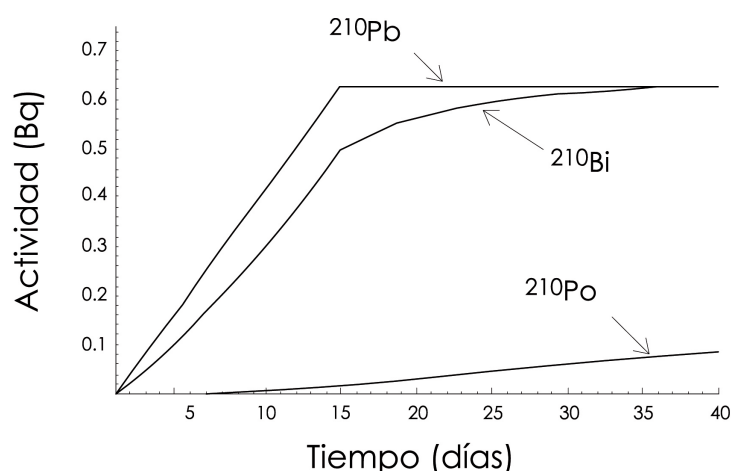


Figura 106: Esquema de la evolución de la actividad de los descendientes de vida larga del ^{222}Rn en filtros del equipo para la medida del espectro dimensional de aerosoles radiactivos

Fase 3. Una vez conocida la evolución temporal de los descendientes de vida larga en el filtro durante la fase 2, el número de partículas contabilizadas durante el recuento realizado en el detector α, β será la actividad en esta fase integrada durante el período de recuento $t_f - t_i$, multiplicado por el factor de eficiencia del detector. Dado que el período de semidesintegración del ^{210}Bi es de 5.01 días y el inicio de la medida se realiza normalmente transcurridos 15 días, calcularemos solo el número de cuentas de ^{210}Pb y ^{210}Po , de período de semidesintegración 22.3 años y 138.38 días respectivamente. Aplicando la ecuación 40:

$$NC_{210Pb} = -\frac{\epsilon N_{210Pb}(t_b)}{\lambda_{210Pb}} (e^{-\lambda_{210Pb}t_f} - e^{-\lambda_{210Pb}t_i}) \quad (79)$$

$$NC_{210Po} = \epsilon \left(\frac{M_{31}}{\lambda_{210Pb}} (e^{-\lambda_{210Pb}t_i} - e^{-\lambda_{210Pb}t_f}) + \frac{M_{32}}{\lambda_{210Bi}} (e^{-\lambda_{210Bi}t_i} - e^{-\lambda_{210Bi}t_f}) + \frac{M_{33}}{\lambda_{210Po}} (e^{-\lambda_{210Po}t_i} - e^{-\lambda_{210Po}t_f}) \right) \quad (80)$$

De 79 y 80 se obtienen las concentraciones de ^{210}Pb y ^{210}Po en el momento t_b .

A.7 Consideraciones relativas al uso del ^{210}Po y ^{210}Pb en el cálculo del tiempo de residencia mediante el método del cociente de actividades

En la literatura científica se puede encontrar el uso del método del cociente de actividades, utilizando el ^{210}Po como radioisótopo hijo para realizar estimaciones acerca del tiempo de residencia. Sin embargo, la actividad del ^{210}Po es lo suficientemente baja como para que cualquier pequeña variación influya decisivamente en el valor obtenido de tiempo de residencia. Para valorar este hecho, se ha estudiado la diferencia entre la evolución de la actividad de ^{210}Po en presencia y en ausencia del mismo en el aire. En ausencia de ^{210}Po en el aire, la actividad del mismo se debe exclusivamente a las desintegraciones del ^{210}Pb y ^{210}Bi . En la tabla 27 se observa la comparativa

entre la evolución de la actividad de ^{210}Po en los dos casos, calculándose la diferencia entre ambas actividades. Esta diferencia supone la actividad debida exclusivamente al ^{210}Po atmosférico. La columna del ratio de actividad con y sin ^{210}Po en el aire de la tabla 27 indica la proporción de actividad que proviene del radionucleido padre. Por tanto, a partir de 20 días aproximadamente, solo del orden del 30% de la actividad de ^{210}Po medido es significativo de su concentración. Por otro lado, se han calculado las incertidumbres en la actividad de ^{210}Po en los filtros mediante propagación de la incertidumbre de la medida de cuentas alfas e incertidumbre de la eficiencia. Dicha incertidumbre presenta un valor promedio de 0.64 mBq/filtro, un valor elevado, que es en la mayoría de los casos superior a la propia actividad en sí. Se concluye que las medidas de actividad de ^{210}Po en el caso de los filtros del equipo medidor del espectro dimensional de aerosoles radiactivos existe una incertidumbre demasiado elevada como para ser utilizado en los estudios de aerosoles radiactivos en los cuales el ^{210}Po es el radioisótopo hijo.

Tabla 27: Estimación de la evolución de las actividades de ^{210}Po para una muestra tomada en presencia o ausencia del mismo en el aire

Tiempo de espera hasta la medida de actividad(días)	Actividad en el filtro sin ^{210}Po en el aire (mBq)	Actividad en el filtro con ^{210}Po en el aire (mBq)	Ratio de actividad con y sin ^{210}Po en el aire (%)	Diferencia entre actividades (mBq)
0	0.46	1.11	41%	0.64
5	0.46	1.11	41%	0.64
10	0.67	1.13	59%	0.46
15	0.90	1.51	60%	0.61
20	1.11	1.72	65%	0.61
30	1.54	2.12	73%	0.58
40	1.95	2.49	78%	0.54
50	2.33	2.85	82%	0.52
100	3.99	4.44	90%	0.45

B Criterios de elección del par de radioisótopos para el cálculo del tiempo de residencia según el método del cociente de actividades

B.1 Introducción

El método del cociente de actividades detallado en el apartado 3.5.2 es comúnmente utilizado en la literatura científica para realizar estimaciones acerca del tiempo de residencia de las partículas radiactivas en el aire. En este apéndice se pretende hacer una revisión que tiene como objetivo evaluar los casos en los cuales el uso de dicho método es óptimo, mediante el estudio de la actividad de los radioisótopos padre e hijo tanto en el aire como en el filtro, una vez que la muestra ha sido retirada.

B.2 Criterios relativos a la evolución de la actividad de los radioisótopos en el aire

El tiempo de residencia promedio se calcula según el método del cociente de actividades mediante la expresión 5. Despejando el tiempo de residencia se obtiene:

$$\tau_R = \frac{1}{\lambda_d \left(\frac{N_p \lambda_p}{N_d \lambda_d} - 1 \right)} \quad (81)$$

Considerando constante la actividad en el aire del radioisótopo padre, se puede representar la evolución del tiempo de residencia a medida que este va generando la actividad del isótopo hijo. En la figura 107 se observa una gráfica del tiempo de residencia promedio frente a la actividad del radioisótopo hijo para diferentes valores de λ_d , para una actividad del isótopo padre de valor 5 Bq.

Tal y como se observa en dicha figura, la expresión 81 para una constante de semidesintegración del radioisótopo hijo elevada presenta valores de tiempo de residencia muy variables. Esto se traduciría en una alta inestabilidad a la hora de utilizar este método para el cálculo del tiempo de residencia promedio puesto que un valor concreto de actividad del radioisótopo hijo podría ofrecer un rango muy amplio de valores de tiempo de residencia. Por contra, para constantes de semidesintegración del radioisótopo hijo más bajas, el tiempo de residencia ofrece unos valores menos variables y por tanto el uso de este método presentaría una mayor estabilidad. Para valores muy bajos de constante de semidesintegración, el tiempo de residencia ofrece una relación lineal pero de tendencia prácticamente idéntica para diferentes valores de λ_d .

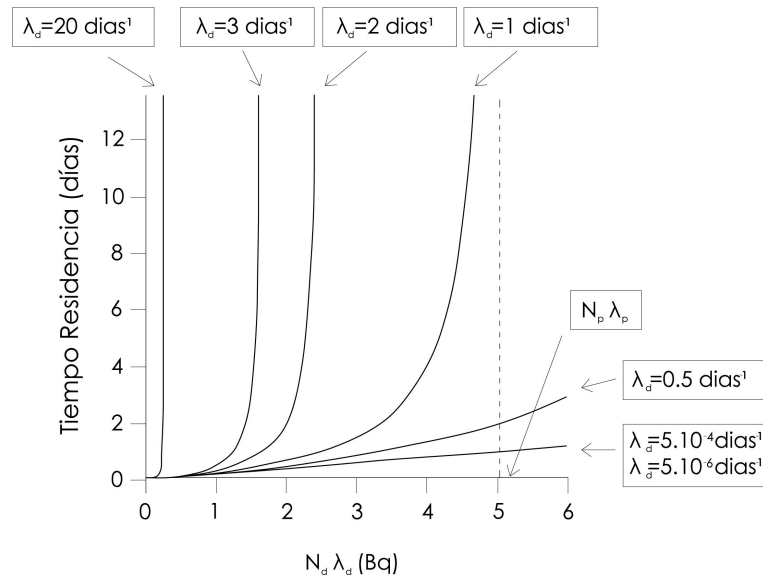


Figura 107: Tiempo de residencia en función de la actividad del radionucleido hijo según el método del cociente de actividades para diferentes valores de λ_d