

3/71



UNIVERSIDAD DE GRANADA
FACULTAD DE CIENCIAS
DEPARTAMENTO DE QUÍMICA INORGÁNICA



UNIVERSIDAD DE GRANADA
Facultad de Ciencias
Fecha 3/02/00
ENTRADA NUM. 371

FACTORES CONDICIONANTES DE LA
RADIATIVIDAD MEDIOAMBIENTAL EN ÁREAS
DEL S.E. PENINSULAR.



27 ENE. 2000

ANTONIA CAMACHO GARCÍA
MEMORIA DE TESIS DOCTORAL

BIBLIOTECA UNIVERSITARIA
GRANADA
N.º Documento 613376019
N.º Copia 015415011

GRANADA, 2000.



PRESTAMO INTERBIBLIOTECARIO DE TESIS INÉDITAS

Datos de la tesis:

- AUTOR: Antonia Camacho García
- TÍTULO: Factores condicionantes de la radiactividad medioambiental en áreas del S.E. peninsular
- UBICACIÓN: fci
- Nº PETICIÓN GTBIB: 12127080

Datos del usuario que consulta la tesis:

- NOMBRE DEL USUARIO: OTERO PAZOS, Alberto
- CENTRO SOLICITANTE: UNIVERSIDAD DA CORUÑA
- FECHA ENVÍO: 10.12.2012

COMPROMISO: me comprometo a no reproducir el texto de la tesis arriba mencionada y hacer un uso de la misma para fines de docencia o investigación, adecuándome a la legislación vigente y a la normativa de la Biblioteca Universitaria de Granada.

DEVOLVER ESTE IMPRESO RELLENO Y FIRMADO
CONSULTA EN SALA

Ferroc , a 3 de XANEIRO de 2012

Firmado

**FACTORES CONDICIONANTES DE LA
RADIATIVIDAD MEDIOAMBIENTAL EN ÁREAS DEL
S.E. PENINSULAR.**

Memoria presentada por la licenciada Antonia Camacho García para aspirar al grado de Doctor en Ciencias Químicas.

Granada, 2000.



Fdo.: Antonia Camacho García.

Los directores de la Tesis:



Fdo.: Cecilio González Gómez,
Científico Titular del CSIC y
Profesor Asociado de Química Inorgánica
de la Universidad de Granada.



Fdo.: Luis García-Rossell
Investigador Científico del Consejo
Superior de Investigaciones Científicas.

Antonio Navarrete Guijosa, Director del Departamento de Química Inorgánica de la Facultad de Ciencias de la Universidad de Granada,

INFORMA:

Que el trabajo de investigación que se presenta en esta Memoria titulado **Factores condicionantes de la radiactividad medioambiental en áreas del S.E. peninsular** ha sido realizado en el Laboratorio de Radioquímica y Radiología Ambiental del Departamento de Química Inorgánica de la Facultad de Ciencias por la Licenciada en Ciencias Químicas D^a Antonia Camacho García, bajo la dirección de los Doctores D. Cecilio González Gómez y D. Luis García-Rossell Martínez y constituye la Tesis Doctoral de la interesada, cuya presentación autorizo en Granada a veintiuno de enero de dos mil.



Fdo: Dr. D. Antonio Navarrete Guijosa

Deseo expresar mi más profundo agradecimiento:

A los Doctores D. Cecilio González Gómez y D. Luis García-Rossell, director y codirector de esta Tesis, por sus continuas enseñanzas, paciencia y constante estímulo, sin los cuales no hubiera sido posible la realización de este trabajo. No sólo se han limitado a dirigir y orientar, sino que también han trabajado estrechamente incluso en las tareas más ingratas y eso es mucho más de lo que se espera de una dirección acertada.

A la Dra. D^a Myriam Martín-Vallejo por su continuo apoyo, comprensión y ayuda prestada durante todos los años que ha durado esta Tesis. Ha colaborado en todas las facetas de la misma, desde la toma de muestras hasta cuestiones informáticas. Pero sobre todo deseo agradecerle su amistad.

A D. Jesús López Peñalver, por el interés, por su colaboración en cuestiones informáticas y por las múltiples sugerencias recibidas que me han sido de un valor inestimable para la conclusión de este trabajo.

Al Dr. D. Daniel Martín Ramos, por su ayuda en la toma de muestras en el dominio hercínico.

A la Dra. Farida Berrad, por su colaboración y ayuda en la preparación de las muestras de suelos.

A D^a Lourdes Sánchez, por la medida de muestras mediante espectrometría gamma.

Al Departamento de Química Inorgánica por la acogida dispensada y las facilidades encontradas para el desarrollo de la presente Tesis.

A mi familia, por la ilusión mostrada y por el continuo apoyo prestado, ya que todos los miembros han contribuido directa o indirectamente para que pudiera llevarse a cabo.

Por último, pero no en último lugar, a Antonio, gracias por tus días de espera, paciencia y soledad. Gracias por permitir que te sustrajera todo el tiempo necesario para la ejecución de esta Tesis y también por haber colaborado para que pudiera terminar la misma.

A Antonio
y a Marta

I- ANTECEDENTES Y OBJETIVOS

I.1. ANTECEDENTES.	2
I.2. OBJETIVOS.	5

II-INTRODUCCIÓN

II.1. FUENTES DE RADIACIÓN.	11
II.2. FUENTES NATURALES DE RADIACIÓN.	13
<u>II.2.1. RADIACIÓN CÓSMICA.</u>	13
<u>II.2.2. RADIONÚCLIDOS COSMOGÉNICOS.</u>	15
<u>II.2.3. RADIONÚCLIDOS PRIMORDIALES.</u>	19
<u>II.2.3.1. Radionúclidos naturales sin relación genética.</u>	19
<u>II.2.3.2. Familias radiactivas naturales.</u>	21
II.3. FUENTES ARTIFICIALES DE RADIACIÓN.	28
<u>II.3.1. EXPLOSIONES NUCLEARES.</u>	28
<u>II.3.2. PRODUCCIÓN DE ENERGÍA.</u>	32
II.4. RADIONÚCLIDOS PRESENTES EN MUESTRAS AMBIENTALES.	34
<u>II.4.1. MUESTRAS ATMOSFÉRICAS.</u>	34
<u>II.4.1.1. Be-7 en muestras atmosféricas.</u>	36
<u>II.4.2. MUESTRAS DE AGUA.</u>	40
<u>II.4.2.1. Agua de lluvia.</u>	40
<u>II.4.2.2. Agua subterránea.</u>	42
II.4.2.2.1. Uranio.	43
II.4.2.2.2. Radio.	43
II.4.2.2.3. Radón.	44
II.4.2.2.4. Potasio-40.	47
<u>II.4.3. MUESTRAS DE SUELOS.</u>	47
<u>II.4.3.1. Radiactividad de los diversos tipos de rocas.</u>	49
II.4.3.1.1. Rocas ígneas.	50

II.4.3.1.1. Rocas sedimentarias.	51
II.4.3.1.1. Rocas metamórficas.	53
<u>II.4.3.2. Radiactividad de los suelos españoles.</u>	54
<u>II.4.4. PELIGROSIDAD DE LOS RADIONÚCLIDOS PRESENTES EN MUESTRAS AMBIENTALES.</u>	57

III. MATERIALES UTILIZADOS.

III.1. DISPOSITIVOS UTILIZADOS PARA LA TOMA DE MUESTRAS.

60	
<u>III.1.1. MUESTREADOR PARA AIRE.</u>	60
<u>III.1.2. BATEA PARA COLECTAR AGUA DE LLUVIA.</u>	61
<u>III.1.3. TOMA DE MUESTRA DE AGUA SUBTERRÁNEA.</u>	62
<u>III.1.4. PLANTILLA PARA LA TOMA DE MUESTRAS DE SUELOS.</u>	63

III.2. PORTAMUESTRAS UTILIZADOS PARA LA MEDIDA.

<u>III.2.1. FILTROS PARA LA RETENCIÓN DE PARTÍCULAS DE POLVO ATMOSFÉRICO.</u>	63
<u>III.2.2. CARTUCHOS PARA LA RETENCIÓN DEL ¹³¹I DEL AIRE.</u>	64
<u>III.2.3. PORTAMUESTRAS TIPO MARINELLI DE UN LITRO DE CAPACIDAD.</u>	64
<u>III.2.4. LÁMINA DE PLÁSTICO PARA AGUA EVAPORADA.</u>	65
<u>III.2.5. VIALES PARA LAS MEDIDAS EN CENTELLEO LÍQUIDO.</u>	65

III.3. PATRONES DE CALIBRADO.

<u>III.3.1. DISOLUCIÓN PATRÓN DE ²⁴¹Am.</u>	65
<u>III.3.2. DISOLUCIÓN PATRÓN PARA ESPECTROMETRÍA GAMMA.</u>	66
<u>III.3.3. DISOLUCIÓN PATRÓN DE ⁹⁰Sr/⁹⁰Y.</u>	68

III.4. EQUIPOS DE MEDIDA.

<u>III.4.1. ESPECTRÓMETRO GAMMA MULTICANAL.</u>	68
<u>III.4.2. ESPECTRÓMETRO DE CENTELLEO LÍQUIDO.</u>	74
<u>III.4.3. pHMETRO PORTÁTIL.</u>	77
<u>III.4.4. CONDUCTIVÍMETRO PORTÁTIL.</u>	77

III.5. OTRAS TÉCNICAS UTILIZADAS.	78
<u>III.5.1. ANÁLISIS GRANULOMÉTRICO DE LOS SUELOS.</u>	78
IV. MÉTODOS EXPERIMENTALES.	
IV.1. TOMA DE MUESTRAS.	80
<u>IV.1.1. MUESTRAS DE AIRE.</u>	80
<u>IV.1.2. MUESTRAS DE AGUA DE LLUVIA.</u>	80
<u>IV.1.3. MUESTRAS DE AGUA SUBTERRÁNEA.</u>	81
<u>IV.1.4. MUESTRAS DE SUELO.</u>	82
IV.2. PUESTA A PUNTO DE LOS EQUIPOS DE MEDIDA.	83
<u>IV.2.1. pHMETRO PORTÁTIL.</u>	83
<u>IV.2.2. CONDUCTIVÍMETRO PORTÁTIL.</u>	84
<u>IV.2.3. ESPECTRÓMETRO GAMMA MULTICANAL.</u>	84
<u>IV.2.4. ESPECTRÓMETRO DE CENTELLEO LÍQUIDO.</u>	85
IV.3. PREPARACIÓN DE PATRONES DE REFERENCIA.	87
<u>IV.3.1. PATRONES PARA ESPECTROMETRÍA GAMMA.</u>	87
<u>IV.3.1.1. Patrón para el calibrado en energías.</u>	88
<u>IV.3.1.2. Patrones para el calibrado en eficiencias.</u>	89
<u>IV.3.2. PATRONES PARA CENTELLEO LÍQUIDO.</u>	95
<u>IV.3.2.1. Patrones de ⁹⁰Sr e ⁹⁰Y.</u>	96
IV.4. MEDIDA DE LOS PATRONES.	97
<u>IV.4.1. PATRONES PARA ESPECTROMETRÍA GAMMA.</u>	97
<u>IV.4.1.1. Calibrado en energías.</u>	97
<u>IV.4.1.2. Calibrado en eficiencias.</u>	98
<u>IV.4.2. PATRONES PARA CENTELLEO LÍQUIDO.</u>	99
IV.5. PREPARACIÓN DE MUESTRAS PARA LA MEDIDA DE LA RADIACIÓN DE FONDO.	100

<u>IV.5.1. PREPARACIÓN DE FONDOS PARA LA TÉCNICA DE ESPECTROMETRÍA GAMMA.</u>	100
<u>IV.5.2. PREPARACIÓN DE FONDOS PARA LA TÉCNICA DE CENTELLEO LÍQUIDO.</u>	102
IV.6. MEDIDA DE LA RADIACIÓN DE FONDO.	103
IV.7. PREPARACIÓN DE LAS MUESTRAS AMBIENTALES.	103
<u>IV.7.1. MUESTRAS ATMOSFÉRICAS.</u>	103
<u>IV.7.2. MUESTRAS DE AGUA DE LLUVIA.</u>	104
<u>IV.7.3. MUESTRAS DE AGUA SUBTERRÁNEA.</u>	104
<u>IV.7.4. MUESTRAS DE SUELOS.</u>	105
<u>IV.7.4.1. Preparación para la medida de emisores gamma.</u>	106
<u>IV.7.4.2. Preparación para la determinación de ⁹⁰Sr.</u>	107
<u>IV.7.4.3. Determinación del contenido en materia orgánica.</u>	108
<u>IV.7.4.4. Análisis granulométrico.</u>	109
IV.8. MEDIDA DE LAS MUESTRAS.	111
<u>IV.8.1. MEDIDA DE EMISORES GAMMA.</u>	111
<u>IV.8.2. MEDIDAS MEDIANTE LA TÉCNICA DE CENTELLEO LÍQUIDO.</u>	113
<u>IV.8.2.1. Medida del ²²²Rn.</u>	113
<u>IV.8.2.2. Medida de ⁹⁰Sr.</u>	115
V. RESULTADOS Y DISCUSIÓN.	
V.1. PREPARACIÓN DE LOS EQUIPOS DE MEDIDA.	119
<u>V.1.1. ESPECTRÓMETRO GAMMA MULTICANAL.</u>	119
<u>V.1.1.1. Calibración en energías.</u>	120
<u>V.1.1.2. Calibración en eficiencias.</u>	121
<u>V.1.1.3. Medida de la radiación de fondo.</u>	125
<u>V.1.2. ESPECTRÓMETRO DE CENTELLEO LÍQUIDO.</u>	127
<u>V.1.2.1. Selección de la ventana de trabajo.</u>	127
<u>V.1.2.2. Medida de la eficiencia en la ventana de trabajo.</u>	128

V.1.2.2.1. Eficiencia en la ventana del ^{222}Rn.	128
V.1.2.2.2. Eficiencia en la ventana del $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$.	130
<u>V.1.2.3. medida de la radiación de fondo.</u>	131
V.2. MUESTRAS ATMOSFÉRICAS.	133
<u>V.2.1. DETERMINACIÓN DE ^{131}I EN MUESTRAS SEMANALES.</u>	133
<u>V.2.2. DETERMINACIÓN DE ^7Be EN MUESTRAS SEMANALES.</u>	139
<u>V.2.3. DETERMINACIÓN DE ^7Be y ^{210}Pb EN MUESTRAS <u>MENSUALES Y TRIMESTRALES.</u></u>	153
V.3. AGUA DE LLUVIA.	163
V.4. AGUA SUBTERRÁNEA.	166
<u>V.4.1. ESTUDIO DEL MÉTODO DE TOMA DE MUESTRA.</u>	169
<u>V.4.2. ESTUDIO DE LA PÉRDIDA DE ^{222}Rn POR DIFUSIÓN A <u>TRAVÉS DEL PLÁSTICO.</u></u>	170
<u>V.4.3. OPTIMIZACIÓN DE LA EXTRACCIÓN DEL ^{222}Rn CON <u>TOLUENO.</u></u>	177
<u>V.4.4. CONTENIDO EN ^{222}Rn DE LOS MANANTIALES <u>ESTUDIADOS.</u></u>	184
<u>V.4.5. SELECCIÓN DE LA TÉCNICA DE MEDIDA DEL ^{222}Rn.</u>	189
V.5. RADIATIVIDAD DE LOS SUELOS.	191
<u>V.5.1. ESTUDIO ESPACIAL.</u>	191
<u>V.5.2. ESTUDIO DE UN SUELO DE QUÉNTAR.</u>	208
VI. CONCLUSIONES.	211
VII. BIBLIOGRAFÍA.	216
VIII ANEXOS.	
VIII.1. Relación de figuras.	230
VIII.2. Relación de tablas.	232

CAPÍTULO I: ANTECEDENTES Y OBJETIVOS

I.1. ANTECEDENTES

A raíz del accidente ocurrido el 26 de Abril de 1986 en la central nuclear de Chernobyl, se puso de manifiesto que la contaminación radiactiva producida en estos casos no es un problema local, sino de magnitud global, ya que vía atmosférica, la contaminación se transporta hacia zonas muy alejadas del foco emisor. Esto se pudo comprobar al detectarse la nube radiactiva procedente de Chernobyl en toda Europa (Ferrero *et al*, 1987; Hennies, 1986). El grado de contaminación radiactiva en que se vieron afectadas las diferentes regiones y países, fue función de las direcciones dominantes de los vientos que conducían la nube radiactiva producida y de la existencia o no de lluvia coincidente con el paso de dicha nube (Cigna A. A. *et al*, 1987; Baeza A. *et al*, 1993; Walling 1993; Fry *et al*, 1986; Pyatt, 1987). En España, los niveles de contaminación radiactiva que el accidente en Chernobyl causó fueron pequeños y se produjeron solo durante unos días (29/04/86-04/05/86), correspondientes al paso de la nube radiactiva. Las zonas más afectadas fueron la costa Mediterránea e Islas Baleares (CSN, 1986) siendo mínimos los efectos en la cadena trófica (Gil, 1986; Ferrero *et al*, 1987; Baeza *et al*, 1988).

Se deben conocer los niveles “normales” de la radiactividad natural para poder detectar cualquier modificación que se produzca en los mismos (ICRP n°39, 1983). Por eso, para cubrir la vigilancia en la totalidad del territorio español, el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) ha impulsado planes de vigilancia que permiten la realización de medidas radiológicas en áreas geográficamente alejadas de las instalaciones nucleares españolas. Tales planes son la Red de Vigilancia Radiológica Ambiental (REVIRA) y la Red de Alerta a la Radiactividad (RAR) (CSN, 1992a).

Los laboratorios asociados a la red REVIRA tienen asignado un programa de muestreo y análisis que incluye la medida de los radionúclidos contenidos en los siguientes medios:

- Atmósfera.
- Agua de lluvia.

- Suelos.

Para ello se obtienen y analizan muestras de:

- Aerosoles y radioyodos en aire.
- Agua de lluvia.
- Depósito seco.
- Suelos.

La frecuencia con la que se muestrea, el tipo de análisis que se realiza y la frecuencia de los mismos se presenta en la tabla I.

Tabla I. Programa de muestreo y análisis de los laboratorios asociados a la red REVIRA.

TIPO DE MUESTRA	FRECUENCIA MUESTREO	TIPO DE ANÁLISIS	FRECUENCIA ANÁLISIS
Aerosoles	Muestreo continuo semanal.	Alfa y beta total	Semanal
		Espectrometría gamma y Sr-90	Trimestral
Radioyodos en aire	Muestreo continuo semanal	I-131	Semanal
Agua de lluvia	Muestreo continuo mensual	Beta total,	Mensual
		Espectrometría gamma y Sr-90	Trimestral
Depósito seco	Muestreo mensual	Beta total,	
		Espectrometría gamma y Sr-90	Semestral
Suelo	Anual	Beta total,	
		Espectrometría gamma y Sr-90	Anual

El laboratorio de Radiología Ambiental de la Universidad de Granada, donde se ha realizado este trabajo, está integrado en la Red REVIRA desde Enero de 1993 y desde entonces, ha efectuado medidas de radiactividad en muestras ambientales de las provincias

de Jaén, Córdoba, Granada y Almería (Berrad F. *et al*, 1996; Camacho-García A., 1994; Camacho-García A. *et al*, 1996a; Camacho-García A. *et al*, 1996b; Camacho-García A. *et al*, 1997; González-Gómez C. *et al*, 1994; González-Gómez C. *et al*, 1995). Por otra parte, para revisar la fiabilidad de los análisis, nuestro laboratorio ha participado periódicamente en los ejercicios de intercomparación promovidos conjuntamente entre el CSN-CIEMAT (Centro de Investigaciones Energéticas Medio Ambientales y Tecnológicas), habiéndose realizado 4 campañas de intercomparación durante el período de realización de la Tesis (1993-1997). En éstos se han determinado radionúclidos naturales y artificiales en muestras de agua y sedimentos utilizándose las geometrías Duquesa 0,2 L, Agua evaporada y Marinelli 1 L, habiéndose obtenido en todos los casos resultados satisfactorios que garantizan la validez de los resultados que se presentan en esta Memoria.

En la tesina de licenciatura (Camacho-García A., 1994) se presentó la puesta a punto y los resultados correspondientes a 1993, obtenidos en el laboratorio de Radioquímica y Radiología Ambiental de la Facultad de Ciencias de Granada. En el presente trabajo, dado que se han utilizado las mismas técnicas, nuevamente se presentan las características de los dispositivos utilizados en la toma de muestra, de los portamuestras utilizados en la medida, de los patrones usados en los calibrados y de los equipos de medida. Todo ello se expone en el capítulo III (Materiales). También se muestran las operaciones básicas requeridas para el funcionamiento del laboratorio; tales operaciones son: la puesta a punto de los equipos de medida, la preparación de los patrones, la calibración de los equipos, la preparación de las muestras y la medida de las mismas. Todo ello se presenta en el capítulo IV (Métodos experimentales) y en el capítulo V se presentan y analizan los resultados obtenidos.

I.2. OBJETIVOS

En esta Tesis, se aborda en primer lugar, la medida de los niveles “normales” de la radiactividad natural en la provincia de Granada, para posteriormente estudiar los factores que influyen en las variaciones de tales niveles. Dado que el medio ambiente está constituido principalmente, por aire, agua y suelo hemos centrado nuestro estudio en estos tres medios y presentamos los resultados de cinco años correspondientes al período 1993-1997, así como un análisis de los parámetros ambientales que influyen en tales datos.

Se ha estudiado la **radiactividad atmosférica**, siendo uno de los objetivos a cubrir en el presente trabajo la determinación de la evolución temporal en la atmósfera de los niveles de los radionúclidos ^7Be , ^{131}I y ^{210}Pb . En la presente Memoria se presentan valores trimestrales de la actividad de los radionúclidos naturales ^7Be y ^{210}Pb en partículas de polvo, correspondientes al período 1993-1997, valores mensuales de ^7Be y ^{210}Pb correspondientes al período En.95-Dic.97 y valores semanales de ^7Be e ^{131}I correspondientes al período 30/12/92-24/12/97 para el ^{131}I y 08/03/95-24/12/97 para los valores de ^7Be . Estos valores se han relacionado con las variables meteorológicas que pueden influir en sus variaciones, como son cantidad de lluvia, horas de lluvia, presión atmosférica, temperatura, etc, con el fin de establecer la variable que ejerce una mayor influencia.

También se presentan los niveles de **radiactividad del agua**, distinguiéndose entre radiactividad en el agua de lluvia y radiactividad de las aguas subterráneas. El control de la radiactividad de las aguas subterráneas no se contempla en el programa de análisis de los laboratorios asociados a la red REVIRA (tabla I) siendo éste un estudio que hemos realizado en nuestro laboratorio debido al uso creciente de este tipo de aguas en los últimos años como consecuencia de la sequía sufrida en Andalucía.

La *radiactividad* detectada en el *agua de lluvia* se ha relacionado con la radiactividad atmosférica, ya que mediante la lluvia se produce un arrastre de aerosoles presentes en la atmósfera, como se deduce del hecho de que en este medio se han detectado principalmente

los isótopos ^7Be y ^{210}Pb . Se presentan 20 valores trimestrales de los isótopos detectados en este tipo de muestras en el período 1993-1997.

Se ha detectado ^{222}Rn en las *aguas subterráneas* debido al interés creciente que presenta este radionúclido disuelto en agua al contribuir en la cantidad de ^{222}Rn en el aire del interior de los edificios y por las propiedades terapéuticas asociadas a bajas y medias dosis del mismo (Armijo *et al*, 1994; Barnett *et al*, 1992; Kito M.E., 1994; Kito *et al*, 1995; Loughtin J., 1990; Mills W.A., 1990; Schönhofer *et al*, 1987; Schönhofer F., 1992; Soto *et al*, 1988; Soto *et al*, 1992; Soto *et al*, 1995a; Soto *et al*, 1995b; Soto *et al*, 1996).

Se han tomado muestras de agua subterránea en los dos dominios geológicos representativos de Andalucía, tales dominios son el dominio Hercínico y el dominio Alpino muestreándose tanto aguas termales como no termales. Del dominio Hercínico se han tomado muestras en Sierra Morena y se han estudiado 6 pozos de características diferentes y como representativas del dominio Alpino en la provincia de Granada, se han tomado muestras en el Valle de Lecrín, zona del Cubillas, Lanjarón y Pantano de Los Bermejales, habiéndose estudiado 19 manantiales diferentes. En este tipo de muestras se ha estudiado la toma de muestra, la concentración del Radón contenido en las aguas mediante extracción con tolueno, se ha estudiado la evolución temporal del contenido en Radón de algunas fuentes, se han comparado los resultados obtenidos con dos técnicas de medida del Radón y se han comparado los resultados correspondientes a ambos dominios geológicos y a fuentes termales y no termales. Tales medidas deben ser consideradas solamente como una aproximación regional, dado el número de muestras con relación a la superficie.

Se presentan también los **radionúclidos presentes en los suelos** de los manantiales estudiados. Dado que los factores que condicionan la concentración en ^{222}Rn de las aguas subterráneas son dos: contenido en Uranio de la roca almacén del acuífero y facilidad del ^{222}Rn formado a partir del ^{238}U para pasar al agua (Morawsda, 1993), no sólo hemos detectado los isótopos presentes en tales suelos, sino que también hemos medido otras características de los mismos. Así se muestra el contenido en las diferentes familias

naturales de los diversos suelos junto con la humedad, análisis granulométrico y materia orgánica de los mismos. Por otra parte, hemos de señalar la utilidad de tales datos, para el estudio de dosis recibidas por la población (Paniagua J. M., 1991; Baeza A. *et al*, 1993; Zikovsky *et al*, 1994) que habita en tales terrenos, además de poder utilizarse como datos iniciales para estudios sobre fuentes de ^{222}Rn en el interior de edificios (Camacho-García *et al*, 1996b; Gutierrez J. *et al*, 1994; Quindós Poncela L., 1996b), que es uno de los temas que actualmente presenta mayor interés en la mayoría de los países.

Además se presenta un estudio de la radiactividad tanto natural como artificial de un suelo de Quéntar a lo largo del período 1992-1997.

A continuación en la tabla II se presenta la ubicación de los puntos de muestreo de agua subterránea, en la figura 1, la localización de los diversos puntos muestreados y en la 2 se muestra un resumen de los tipos de muestras y análisis que se presentan en esta Tesis.

Tabla II. Ubicación de los puntos de muestreo de agua subterránea.

Muestra	Población	Muestra	Población	Muestra	Población
1	La Malahá	10	Padul	18	La Malahá
2	La Malahá	11	Padul	19	La Malahá
3	Jayena	12	Vélez Benaudalla	20	Andújar
4	Arenas del Rey	13	Colomera	21	Andújar
5	Játar	14	Colomera	22	Andújar
7	Vélez Benaudalla	15	Colomera	23	Andújar
8	Dúrcal	16	Lanjarón	24	Andújar
9	Dúrcal	17	Lanjarón	25	Andújar

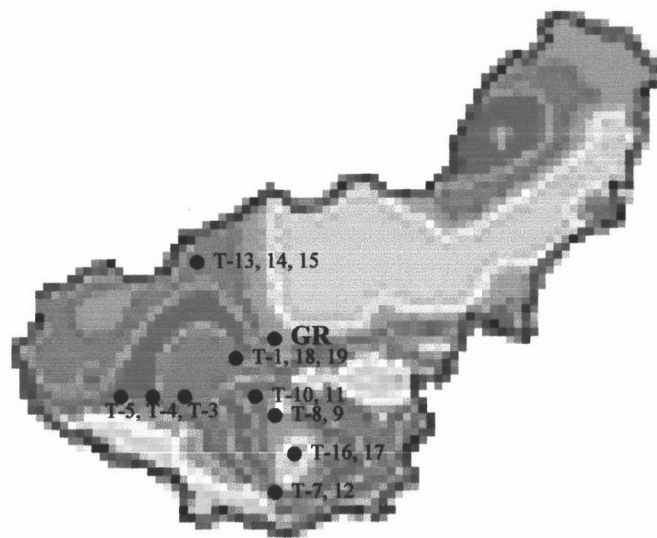
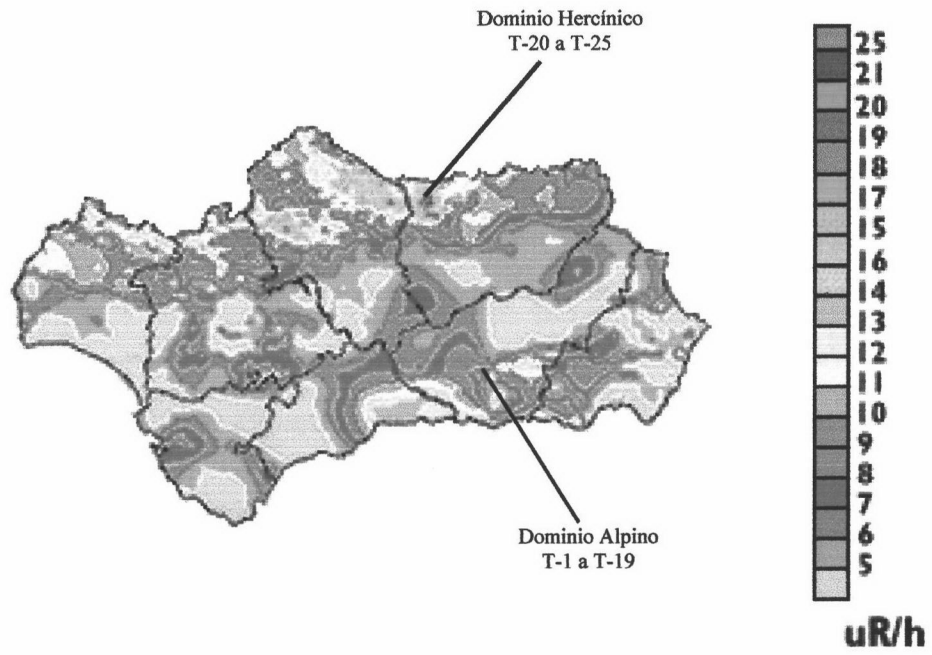


Figura 1. Localización de los puntos de muestreo (los colores indican la tasa de exposición).

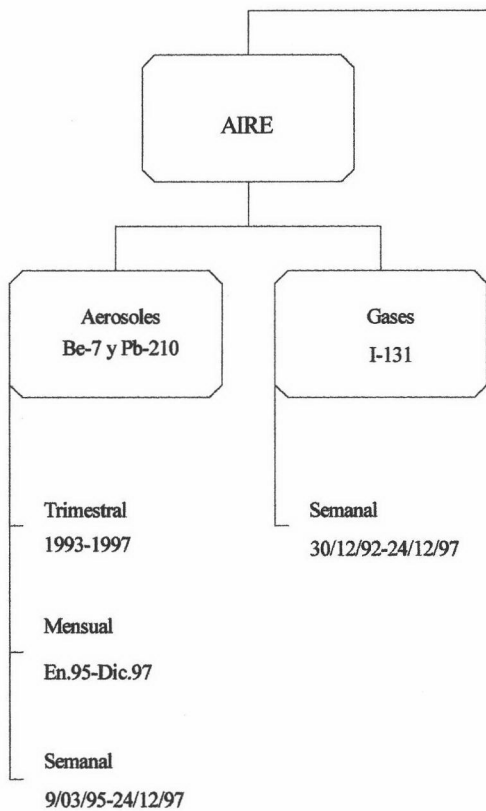


Figura 2. Cuadro resumen del tipo de muestras que se presentan en esta Tesis



MUESTRAS

AGUA

SUELOS

Agua de lluvia
Be-7 y Pb-210

Agua Subterránea

Estudio espacial
Suelos de aguas sub.

Estudio temporal
Quéntar

Trimestral
1993-1997

Espectrometría gamma
Bi-214 y Pb-214
Oct.95-Feb.98

Rad. natural y Cs-137

Rad. natural y artifi.

Centelleo líquido
Rn-222 e hijos
Oct.95-Feb.98

Dic.92-Dic.97



CAPÍTULO II: INTRODUCCIÓN

II.1. FUENTES DE RADIACIÓN.

Los niveles de radiación a los que está sometida cualquier persona proceden, bien de las fuentes naturales de radiación, bien de fuentes artificiales producidas por actividades humanas (UNSCEAR, 1988). La radiactividad natural es la que tiene su origen en la propia naturaleza, al existir en ella elementos que emiten radiactividad espontáneamente, mientras que la radiactividad artificial es originada como consecuencia de las condiciones tecnológicas, las explosiones nucleares y termonucleares, de los desechos de la explotación de la energía atómica, de las aplicaciones clínicas, etc.

Dado que entre un 70 y un 80 % de la dosis que recibe el ser humano procede de la radiactividad natural (ICRP nº39, 1983; Nagda N., 1994; Quindós L., 1996; Schönhofer F., 1992; UNSCEAR, 1988), en esta introducción se presentan las fuentes de radiactividad natural y se describen brevemente las fuentes de radiactividad artificial.

En la figura 3 se muestra la contribución de las diversas fuentes de exposición natural y artificial a la dosis recibida por la población.

Las radiaciones procedentes tanto de fuentes naturales como de artificiales, afectan al hombre como fuentes externas de irradiación o bien como fuentes internas, al ser incorporadas en el cuerpo humano a través de procesos fisiológicos normales, como son la inhalación o la ingestión de alimentos o agua (ICRP nº 26 y 39). Algunos alimentos contienen más radiactividad que otros y las personas que toman grandes cantidades de ellos pueden recibir mayores dosis. Entre estos alimentos mencionaremos el té, café, pan, mariscos. Los mariscos concentran el material radiactivo de tal forma que, incluso sin que existiera radiactividad artificial, las personas que consumen grandes cantidades de mejillones, ostras, chirlas... pueden recibir una dosis de radiación natural por alimentación de hasta un 50% más alta que la media (CSN, 1992b). Esto no significa que deban evitarse estos alimentos. La dosis resultante es muy pequeña y no hay evidencia de cualquier riesgo para la salud (CSN, 1991).

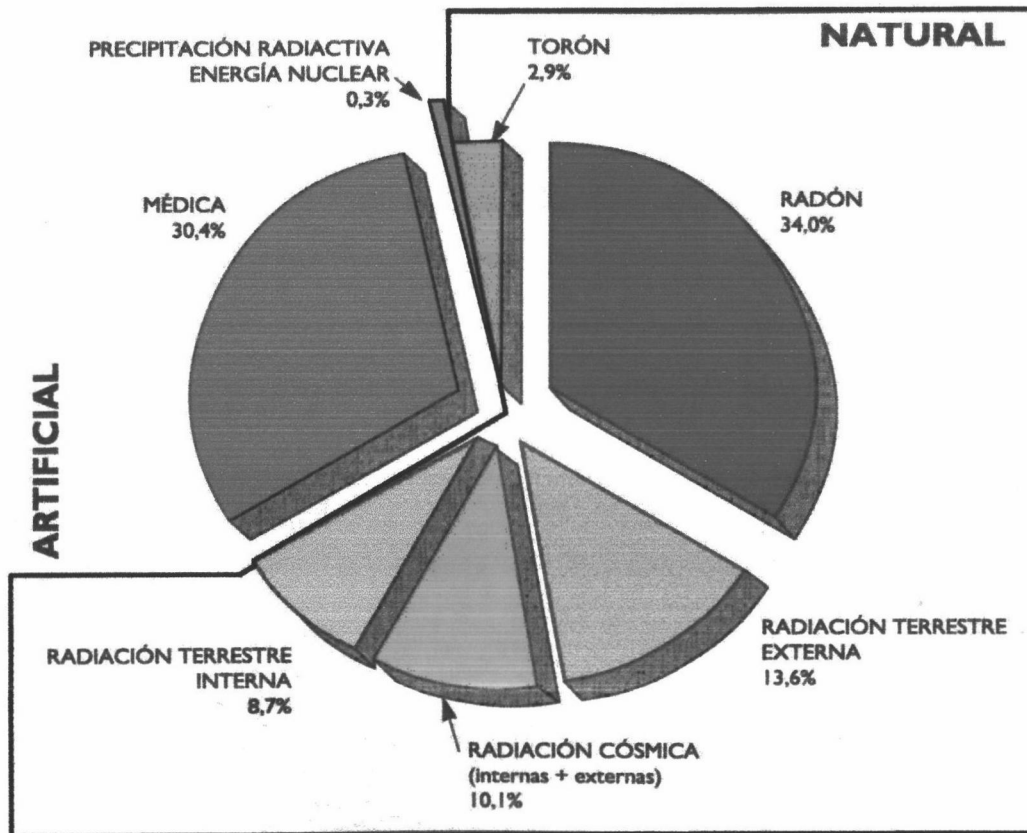


Figura 3. Fuentes de exposición de origen natural y artificial (Quindós L., 1996)

Además de las fuentes de radiación natural existen diversos casos en los que actividades humanas pueden dar como resultado el escape de materiales radiactivos naturales al medio ambiente e irradiar personas. Dos de estas actividades son la minería del carbón y las industrias de fosfatos, ya que estas rocas contienen trazas de materiales radiactivos naturales como el Uranio y el Radio. Aunque las concentraciones son bajas, las cantidades extraídas son muy grandes y los materiales se distribuyen ampliamente por el ambiente, bien directamente como abono fosfatado o indirectamente como producto de la combustión del carbón y la emisión de una pequeña proporción de carbón a través de las chimeneas (CSN, 1991).

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 si, 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 (CSN, 1991).

II.2. FUENTES NATURALES DE RADIACIÓN.

Los radionúclidos naturales presentes, en concentraciones diversas, en los materiales que constituyen el medio ambiente, poseen dos orígenes diferentes que permiten clasificarlos en dos grupos: *radionúclidos cosmogénicos* y *radionúclidos primordiales*, cuyas características básicas describimos a continuación.

En este apartado, consideraremos también la radiación cósmica que, aunque tiene su origen en el espacio exterior, es una fuente natural de radiación importante al proporcionar un 10% de la exposición total que recibe la población (ICRP n°39, 1983), como se observa en la figura 3.

II.2.1. RADIACIÓN CÓSMICA.

La mayor parte de los rayos cósmicos primarios se originan fuera del Sistema Solar y se les denomina *galácticos* para distinguirlos de los procedentes del Sol, a los que se les conoce como *rayos solares*.

Los rayos cósmicos solares primarios se originan durante las erupciones solares, en las que se liberan un gran número de partículas cargadas, principalmente protones y partículas alfa. Sin embargo, estas partículas tienen energías relativamente bajas lo que hace que, cuando alcanzan las capas más altas de la atmósfera, contribuyan a la tasa de producción de iones secundarios de una forma prácticamente insignificante en comparación con la debida a los rayos cósmicos galácticos primarios. Cabe esperar una relación entre la intensidad de los rayos cósmicos y el ciclo solar de once años, estando relacionada inversamente con la actividad solar (Hötzl *et al.* 1991).

La radiación cósmica galáctica primaria consiste principalmente en protones (70-90 %), partículas alfa (9-29 %), un pequeño número de núcleos con número atómico (Z) mayor de 2, (en un porcentaje inferior al 1 %) así como electrones, protones y neutrinos (Rankama K., 1963). Las partículas de los rayos cósmicos pierden todos o algunos de sus electrones y por lo tanto se encuentran como núcleos cargados y poseen una energía muy alta que oscila entre 10^9 - 10^{18} eV. Las partículas primarias de la radiación cósmica, debido a su alta energía, son capaces de producir reacciones nucleares mediante las cuales generan los radionúclidos cosmogénicos que se describirán en el apartado II.2.2.

La densidad de flujo del conjunto de rayos cósmicos galácticos primarios que incide sobre nuestro planeta está afectada por el campo geomagnético de la Tierra, efecto que depende de la latitud (ICRP n° 39). Así, la intensidad de la radiación cósmica a nivel del mar aumenta a partir del Ecuador, hecho que se explica en razón del campo magnético terrestre, que desvía las partículas hacia los lugares en los que el campo es más intenso. El resultado neto de este efecto es que las partículas con energías más bajas alcanzan la Tierra sólo en las proximidades de los polos geomagnéticos, mientras que aquellas con energías superiores a 10^{11} eV pueden alcanzar cualquier punto de la Tierra. Puesto que las partículas con energías inferiores son mucho más numerosas, la mayor parte de la producción secundaria tiene lugar en la zona polar.

La intensidad de la radiación cósmica también aumenta con la **altura** al disminuir la protección dispensada por el aire, siendo fuera de la atmósfera varios órdenes de magnitud superior a la existente a nivel del mar (ICRP n^{os} 26 y 39). Promediando para toda la superficie de la Tierra, el 75 % de las interacciones se producen en la estratosfera y el 25 % en la troposfera siendo en esta última prácticamente constantes en todas las latitudes.

Además la intensidad de la radiación cósmica depende de la presión atmosférica, mostrando una disminución al aumentar la **presión**, es decir al aumentar la profundidad y la masa de la atmósfera, pero las variaciones producidas por el efecto barométrico raramente exceden del 5 % (Rankama K., 1963).

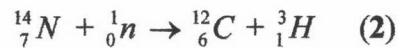
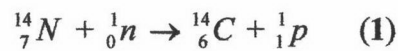
La radiación cósmica que alcanza el nivel del mar consiste casi exclusivamente en partículas secundarias resultantes de las reacciones producidas en la parte superior de la atmósfera.

II.2.2. RADIONÚCLIDOS COSMOGÉNICOS.

Se producen continuamente en las capas altas de la atmósfera como consecuencia de las reacciones nucleares entre las partículas integrantes de la radiación cósmica y los núcleos de los átomos allí presentes. La producción de estos radionúclidos depende de los mismos factores de los que depende la densidad de flujo de los rayos cósmicos (Baeza *et al*, 1996; Dutkiewicz *et al*, 1985; Feely *et al*, 1989), tales factores son la latitud y la altura fundamentalmente, como ya se ha indicado anteriormente.

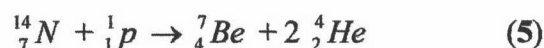
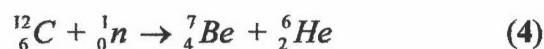
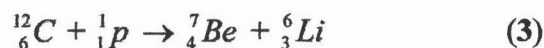
Dado que la intensidad de los rayos cósmicos en la tierra está relacionada inversamente con la actividad solar, es de esperar una correlación negativa entre la producción de estos radionúclidos y el ciclo de las manchas solares (sunspots) (Hötzl *et al.* 1991).

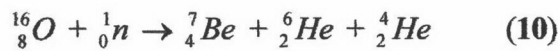
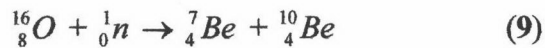
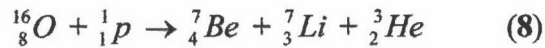
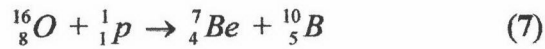
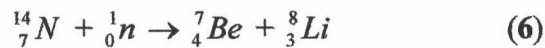
La interacción de la radiación cósmica primaria con los núcleos de Nitrógeno y Oxígeno, principalmente, en la parte superior de la atmósfera produce, además de elementos ligeros, un número importante de neutrones. Dichos neutrones son moderados por la propia atmósfera para producir entre otros los radionúclidos ^{14}C y ^3H mediante las reacciones:



Arnold y Al-Salih (1955) establecieron que la formación de ^7Be y ^{10}Be es el resultado de la interacción de los neutrones de alta energía de los rayos cósmicos con N y O. Cruikshank, Cowper y Grummitt (1956) sugirieron que el ^7Be probablemente se forma en reacciones como $^{14}\text{N}(\text{p}, 2\alpha)^7\text{Be}$. Otra reacción posible es $^{14}\text{N}(\text{n}, {}^8\text{Li})^7\text{Be}$, propuesta por Benioff en 1956.

Otras reacciones propuestas para establecer como se forma el ^7Be (Papastefanou e Ioannidou, 1994) son las siguientes:





La Tabla III muestra algunos de los núclidos radiactivos originados por la interacción de los rayos cósmicos con los componentes atmosféricos. Los radionúclidos cosmogénicos son generalmente, elementos ligeros ($Z < 82$), emisores beta y gamma y con períodos de semidesintegración comprendidos entre 32 minutos (${}^{34m}\text{Cl}$) y 2,5 millones de años (${}^{10}\text{Be}$).

El inventario de cualquiera de estos radionúclidos cosmogénicos a nivel global del planeta viene determinado por la ecuación de balance entre su tasa de producción y la de su desaparición, la cual se produce fundamentalmente por desintegración radiactiva.

Los radionúclidos cosmogénicos que son emisores beta puros se pueden medir mediante el denominado índice beta total, pero éste, como su nombre indica, sólo da una medida de la actividad beta total debida a todos los emisores beta presentes en la muestra, pero no suministra valores correspondientes a cada uno de los demás isótopos. Para la obtención de tales valores es necesario realizar separaciones radioquímicas, lo cual complica mucho los análisis.

Los radionúclidos cosmogénicos producidos en la atmósfera se pueden utilizar para estudiar diferentes procesos atmosféricos tales como mezcla vertical, mezcla y circulación horizontal, velocidad de deposición de aerosoles, etc

Tabla III.- Diversos radionúclidos cosmogénicos (Luyanans, 1964).

Isótopo	Período	Tipo de emisión	Producto de desintegración
H-3	12,32 a	β^-	He-3
Be-7	53,29 d	C.E.	Li-7
Be-10	$1,6 \cdot 10^6$ a	β^-	B-10
C-14	5730 a	β^-	N-14
F-18	1,83 h	β^+	O-18
Na-22	2,6 a	β^+	Ne-22
Na-24	14,96 h	β^-	Mg-24
Si-31	2,62 h	β^-	P-31
Si-32	101 a	β^-	P-32
P-32	14,30 d	β^-	S-32
P-33	25,3 d	β^-	S-33
S-35	87,5 d	β^-	Cl-35
Cl-36	$3,0 \cdot 10^5$ a	β^-	Ar-36

De los radionúclidos cosmogénicos que se pueden medir mediante espectrometría gamma, es el ^7Be , el más ampliamente utilizado al encontrarse en las muestras ambientales en cantidades detectables, es decir por encima del límite inferior de detección (LID) (Bondietti *et al*, 1984; Dibb J.E., 1990; Dibb *et al*, 1994; Dutkiewicz *et al*, 1985; Ishikawa *et al*, 1995; Martell, 1970;

Papastefanou *et al*, 1991; Tremblay *et al*, 1993; Vizee *et al*, 1980; Young *et al*, 1980).

II.2.3.- RADIONÚCLIDOS PRIMORDIALES.

Son aquéllos cuyos períodos de semidesintegración son lo suficientemente grandes con respecto a la edad de la Tierra (estimada aproximadamente en $5,8 \cdot 10^9$ años) como para encontrarlos en cantidades detectables en los materiales de la corteza terrestre. Estos radionúclidos se pueden presentar solos (*isótopos radiactivos naturales sin relación genética*) o como cabeza de serie radiactiva (*familias radiactivas naturales*) que decaen secuencialmente.

II.2.3.1. Radionúclidos naturales sin relación genética.

La Tabla IV agrupa los principales radionúclidos naturales sin relación genética junto con su período de semidesintegración, modo de desintegración y abundancia isotópica.

Todos los períodos son comparables a la edad de la Tierra, lo que explica su presencia actual en la corteza terrestre. Casi todos ellos se desintegran mediante emisión beta o captura electrónica, salvo el ^{147}Sm y el ^{144}Nd que son emisores alfa. En todos los casos, el núclido descendiente tras la desintegración, resulta ser estable, razón que explica que estos radionúclidos no formen series radiactivas.

El **Potasio-40** es el radioisótopo que se encuentra presente en la mayoría de los medios naturales. Además, el Potasio es un elemento esencial en

nuestro metabolismo, de ahí su importancia. Su concentración media en los adultos es de 2,6 g por cada Kg de peso. Dado que la abundancia isotópica del ^{40}K es de $1,19 \cdot 10^{-4}$, su actividad promedio en el cuerpo es de 60 Bq/Kg aproximadamente, constituyendo, por tanto, una fuente importante de radiación interna.

Tabla IV.-Radionúclidos sin relación genética (Choppin G. *et al.*, 1995).

Núclido	Modo de desintegración	Período (Años)	Abundancia Isotópica (%)
K-40	β^- , CE	$1,27 \cdot 10^9$	0,0119
V-50	β^- , CE	$4,8 \cdot 10^{14}$	0,25
Rb-87	β^-	$4,7 \cdot 10^{10}$	27,83
In-115	β^-	$4,6 \cdot 10^{15}$	95,8
La-138	β^-	$1,35 \cdot 10^{11}$	0,089
Nd-144	α	$2,1 \cdot 10^{15}$	23,9
Sm-147	α	$1,06 \cdot 10^{11}$	15,0
Gd-152	α	$1,1 \cdot 10^{14}$	0,2
Hf-174	α	$2 \cdot 10^{15}$	0,18
Lu-176	β^-	$2,2 \cdot 10^{10}$	2,6
Re-187	β^-	$5 \cdot 10^{10}$	62,9
Pt-190	α	$7 \cdot 10^{11}$	0,12
Pt-192	α	$\sim 10^{15}$	0,78
Pb-204	α	$1,4 \cdot 10^{17}$	1,3

En el esquema de desintegración de este radionúclido (Figura 4) se puede observar que, aproximadamente, el 89,3 % de sus desintegraciones se producen por emisión beta, sin emisión gamma asociada, dando lugar al isótopo estable ^{40}Ca . Exceptuando una pequeña fracción (0,01 %) de procesos con emisiones de positrones que dan lugar al núcleo ^{40}Ar en su estado

fundamental, las restantes desintegraciones experimentadas por el ^{40}K (11 %) que tienen lugar son procesos de captura electrónica, quedando el núcleo en estado excitado, a partir del cual se desexcita posteriormente emitiendo un fotón gamma de 1,46 MeV de energía, apareciendo la correspondiente línea de emisión claramente diferenciada en el espectro gamma resultante de la muestra analizada.

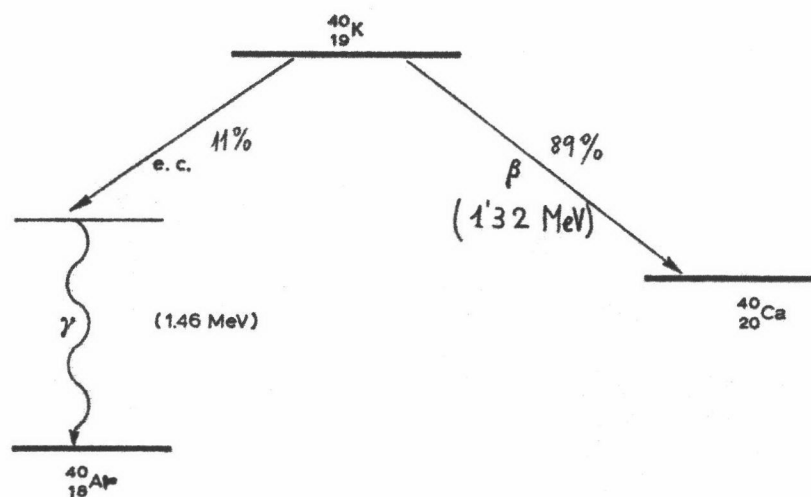


Figura 4. Esquema de desintegración del ^{40}K .

H.2.3.2. Familias Radiactivas Naturales.

Los radioelementos cabeza de serie de las tres familias radiactivas naturales son: ^{238}U , ^{235}U y ^{232}Th . La desintegración radiactiva de cada uno de estos tres radionúclidos produce un núcleo residual que, a su vez, también se desintegra, continuando el proceso de desintegración radiactiva hasta llegar, en cada caso, a un núcleo final estable. Se originan así, familias radiactivas formadas por una secuencia de radionúclidos genéticamente relacionados a través de procesos de desintegración alfa o beta en cascada y encabezadas por un precursor inicial de período muy largo comparado con el de todos los

descendientes. Cada elemento de una serie tiene, en un sistema cerrado en el que no haya aporte ni desaparición del mismo por transporte, una tasa de producción igual a la tasa de desintegración de su predecesor y una tasa de desaparición por propia desintegración. En general, se puede considerar que estos elementos se encuentran todos ellos en equilibrio secular con sus cabezas de serie respectivas.

Las tres series radiactivas (^{238}U , ^{235}U y ^{232}Th) presentan en sus ramas principales, además de los correspondientes cabezas de serie, 14, 11 y 10 radioelementos, respectivamente, y son denominadas serie del Uranio, del Actinio y del Torio. En las figuras 4 a 6 se muestran los esquemas de las tres familias radiactivas naturales.

En la serie del Uranio, cuyo eslabón inicial es el ^{238}U , el número másico de todos sus componentes adopta la forma $4n+2$, donde n es un número entero. La serie del Actinio está encabezada por el ^{235}U y el número másico de sus componentes es de la forma $4n+3$. La serie del Torio está iniciada por el ^{232}Th y el número másico es de la forma $4n$. No queda actualmente serie alguna de radionúclidos naturales cuyos números másicos sean de la forma $4n+1$, debido al pequeño período de semidesintegración del cabeza de serie (^{237}Np , $2,2 \cdot 10^6$ años). Sin embargo, dicha serie llamada del Neptunio, se conoce actualmente gracias a la disponibilidad de síntesis de elementos transuránicos artificiales, cuyas leyes de desintegración son idénticas a las naturales.

De la composición isotópica del U natural (^{238}U 99,28%, ^{235}U 0,72% y ^{234}U 0,006%) y de los valores de los respectivos períodos de sus radioisótopos, se deduce que la contribución del ^{235}U a la radiactividad del medio ambiente es, aproximadamente, un 4% de la del ^{238}U .

La serie del ^{238}U , como ya se ha mencionado anteriormente, consta de 14 elementos radiactivos, excluido el cabeza de serie, y su elemento final estable es el ^{206}Pb (Figura 4). En el equilibrio secular se emiten 8 partículas alfa y 6 partículas beta por cada desintegración del ^{238}U , por lo que la actividad total debida a esta serie, en un sistema que esté en equilibrio, será 14 veces la actividad debida al ^{238}U . Sin embargo, en el medio ambiente, los radionúclidos que constituyen esta serie están sujetos a diferentes tipos de procesos físicos y químicos que pueden dar lugar a que estos elementos y el Uranio precursor no se encuentren en equilibrio (Asikainen M., 1981).

Un radionúclido característico a este respecto es el ^{222}Rn , elemento del grupo de los gases nobles que, por la propia dinámica de su formación, puede escapar de la matriz sólida donde se ha originado y emigrar a través de los poros y fracturas del terreno, a favor de los gradientes de concentración y de presión o disuelto en las aguas subterráneas (Kokotti *et al*, 1995; Korhonen *et al*, 1994; Korhonen *et al*, 1996; Martín-Salas *et al*, 1979; Pohl *et al*, 1976; Quindós L.S., 1996).

El espectro de emisión gamma de la serie presenta 27 picos con rendimientos superiores al 1 % (Raddeca, 1990). Estas emisiones son las que originan los picos más significativos que pueden observarse en un espectro gamma típico de la serie, obtenida mediante un detector de Germanio. Los isótopos que producen estos picos son: ^{210}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Pb , ^{226}Ra , $^{234\text{m}}\text{Pa}$ y ^{234}Th , siendo el ^{214}Bi el que produce la mayoría de estos picos, al producir un 70 % de los mismos (Lin W-J *et al.*, 1991; Schötzig U *et al.*, 1983; Al Dargazelli S.S. *et al.*, 1987).

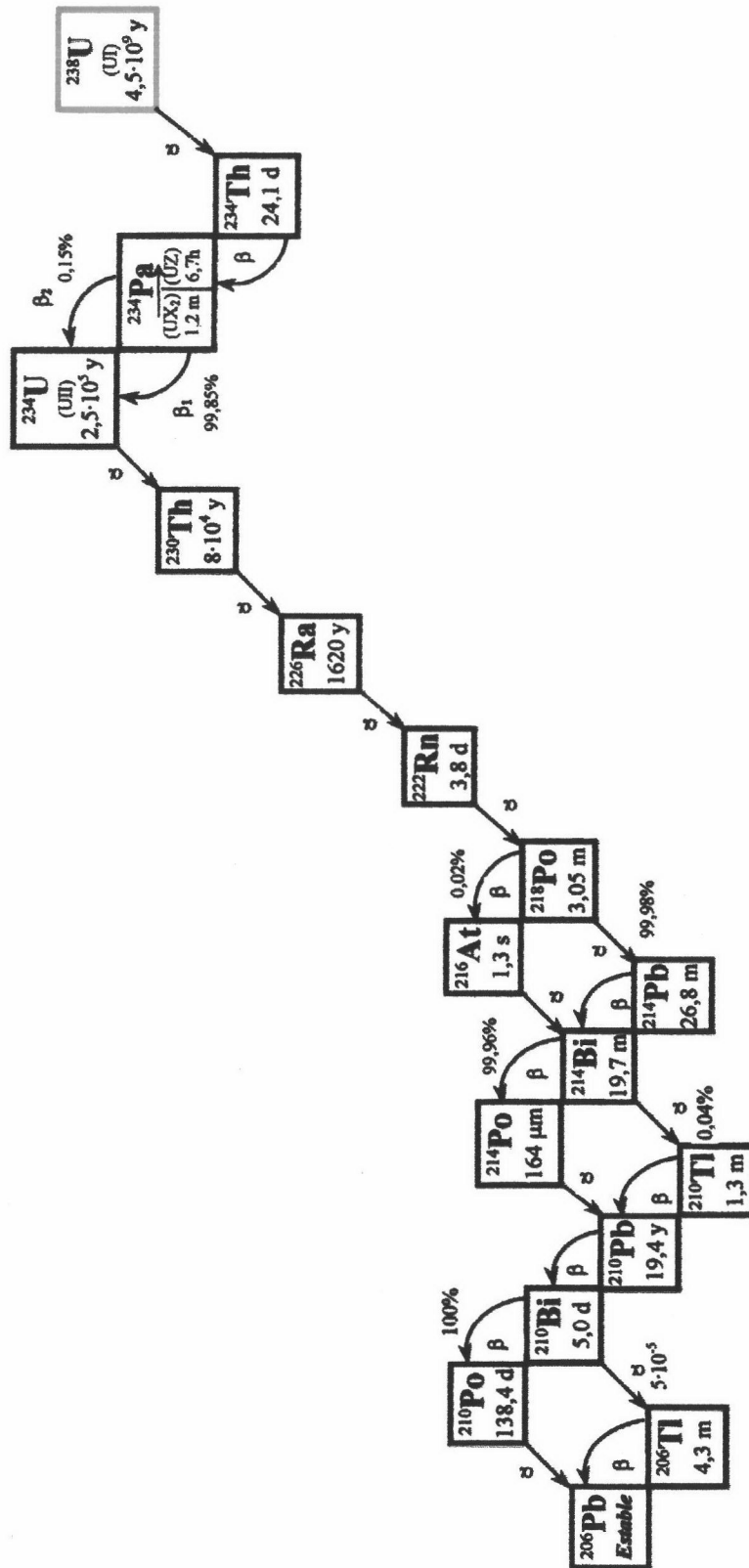


Figura 5. Esquema de desintegración de la serie del U-238

La *serie del ^{235}U* consta en su rama principal, de 11 elementos radiactivos, y su elemento final estable es el ^{207}Pb (Figura 5). En el equilibrio secular se emiten 7 partículas alfa y 4 partículas beta. El espectro de rayos gamma de esta serie es muy simple, al ser producido por los isótopos U-235 y Ra-223, los cuales presentan pocos picos (Lin *et al*, 1991; Raddecaay, 1990).

La *serie del ^{232}Th* consta de 10 radionúclidos, excluido el cabeza de serie, y su elemento final estable es el ^{208}Pb (Figura 6). Debido a la existencia de ramificaciones en la misma, en el equilibrio se emiten 6 partículas alfa y 4 partículas beta por cada desintegración del ^{232}Th , por lo que la actividad de la serie en un sistema de equilibrio, es 10 veces la actividad del citado radioelemento. El radionúclido de período más largo, después del ^{232}Th , es el ^{228}Ra , cuyo período es de 5,75 años.

La serie del Th-232 presenta un espectro de rayos gamma con muchos picos, sin embargo tan solo 12 de estos picos se observan en un espectro de la radiación de fondo, los cuales se producen con una abundancia superior al 4 % (Raddecaay 1990). No obstante en el espectro de un suelo granítico se llegan a observar hasta 33 picos a los que les corresponde una abundancia del 0.5 %. Estos picos los producen los isótopos ^{228}Ac , ^{224}Ra , ^{212}Pb , ^{212}Bi y ^{208}Tl siendo el ^{228}Ac el radionúclido que produce la mayoría de los picos (Lin W. J. *et al.*, 1992; ICRP n° 38, 1983).

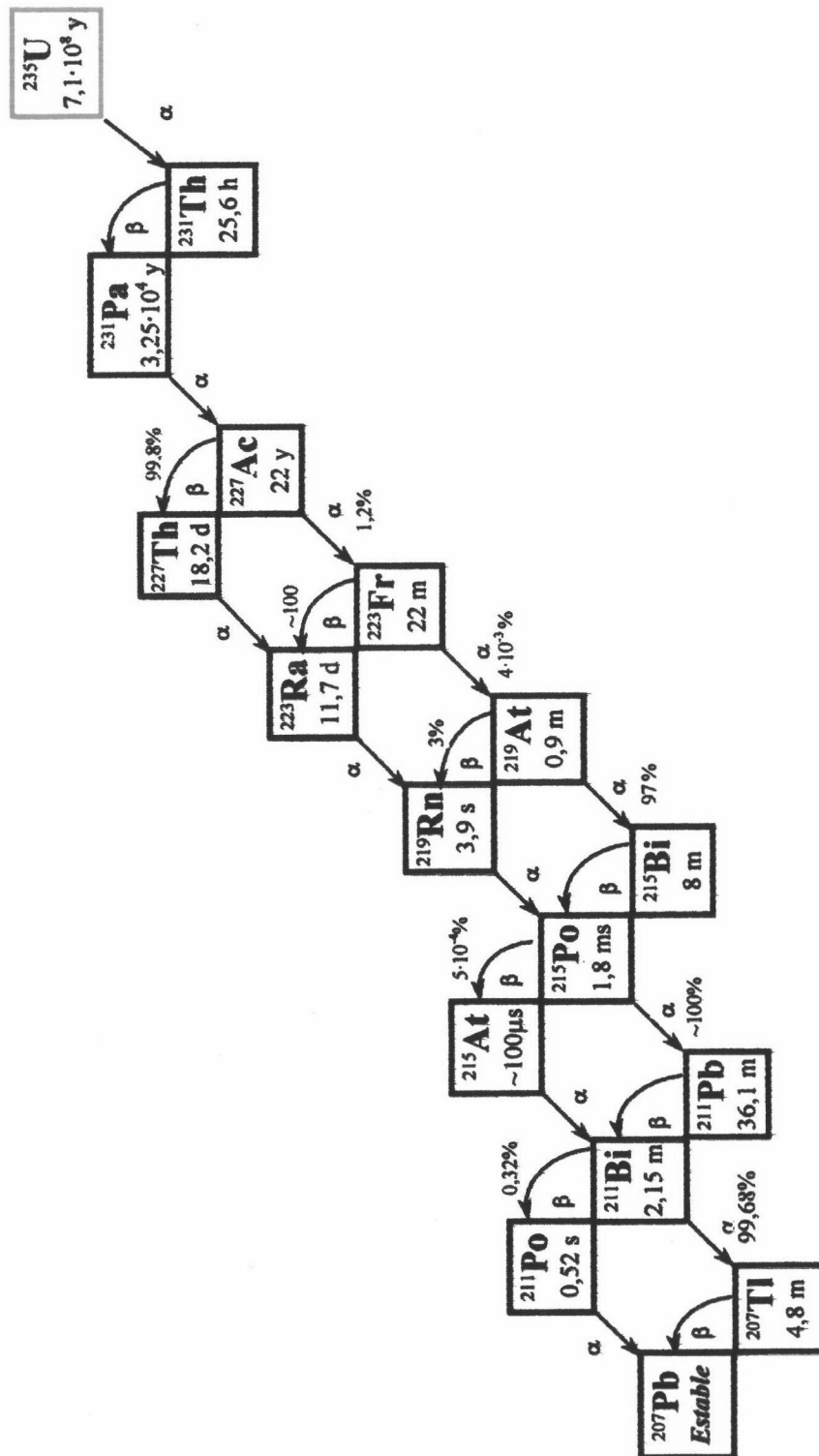


Figura 6. Esquema de desintegración de la serie del U-235.

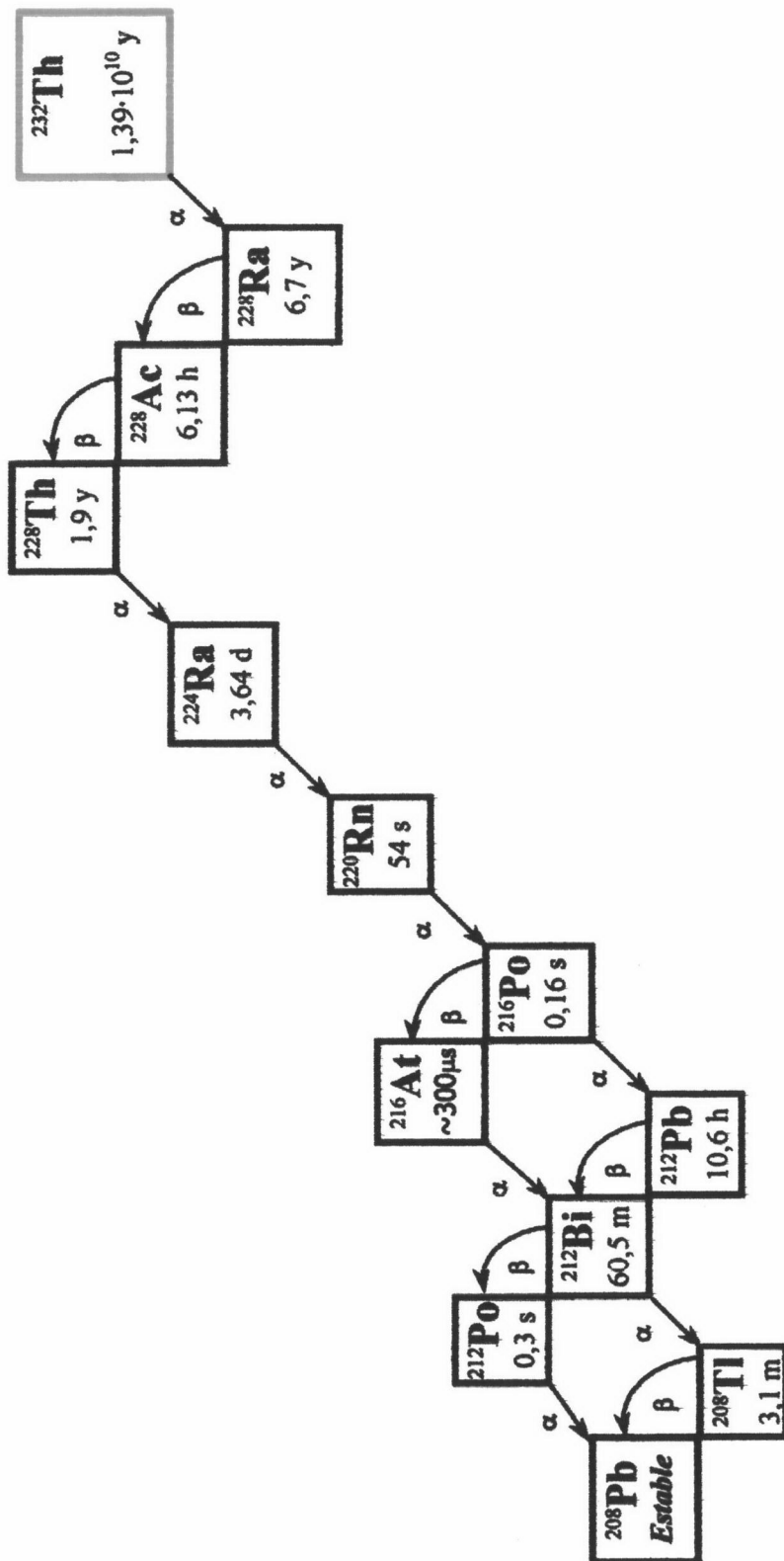


Figura 7. Esquema de desintegración de la serie del Th-232

II.3. FUENTES ARTIFICIALES DE RADIACIÓN.

Se considera radiactividad artificial la procedente de fuentes de radiación debidas a la actividad humana. Durante las últimas décadas el hombre ha creado "artificialmente" alrededor de mil radionúclidos y ha aprendido a utilizar la energía del núcleo atómico para los más variados propósitos, desde la medicina hasta las armas, desde la producción de energía hasta la detección de incendios, desde la iluminación de relojes de pulsera hasta la prospección de minerales. Todos ellos aumentan la radiación recibida tanto por el individuo como por la humanidad en su conjunto. No obstante, la mayoría de la población recibe una cantidad de radiación relativamente pequeña (entre un 20 y un 30%) debida a fuentes artificiales frente a las recibidas por causa de las fuentes naturales, como se observa en la figura 2, apartado II.1 (ICRP nº39, 1983; UNSCEAR, 1988).

Algunas aplicaciones de los materiales radiactivos son las siguientes:

- *Fuentes médicas.*
- *Usos en la industria*
- *Usos en la alimentación y la agricultura*

Estas tres aplicaciones de las fuentes artificiales apenas liberan radionúclidos al medio ambiente y por tanto presentan poco interés en la presente Memoria.

II.3.1. EXPLOSIONES NUCLEARES.

Durante los últimos 40 años hemos estado expuestos a la radiación procedente de la precipitación radiactiva derivada de la utilización de armas nucleares. Ésta apenas procede de las bombas lanzadas sobre Hiroshima y

Nagasaki en 1945; su práctica totalidad resulta de las explosiones llevadas a cabo en la atmósfera para probar armas nucleares (UNSCEAR, 1988). Estas pruebas alcanzaron dos puntos culminantes; el primero, entre 1954 y 1958, período en el que efectuaron explosiones Estados Unidos, la antigua URSS y el Reino Unido; el segundo y más importante, en 1961 y 1962, siendo Estados Unidos y la URSS los principales protagonistas. En la figura 8 se presenta la evolución temporal de la cantidad depositada por las precipitaciones del ^{137}Cs procedente de las pruebas atmosféricas de las armas nucleares, en los Hemisferios Norte y Sur. Los datos del Hemisferio Norte se obtuvieron en Milford Haven (Reino Unido) durante el período 1954-1985, y los datos correspondientes al Hemisferio Sur se obtuvieron en Adelaide (Australia) (Walling *et al*, 1993). En la figura 8 se observan dos máximos que coinciden con los puntos culminantes de dichas pruebas. Así mismo también se observa cómo la cantidad depositada se ha ido reduciendo tras la firma del Tratado de no Proliferación de Pruebas Nucleares de 1963, según el cual estos tres países se comprometían a no probar armas nucleares en la atmósfera, los océanos y el espacio exterior. Desde entonces, Francia y China han venido llevando a cabo una serie de pruebas menores en la atmósfera, aunque con frecuencia decreciente. Las pruebas subterráneas continúan practicándose, sin que apenas produzcan precipitación radiactiva.

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 alrededor del mundo, permaneciendo, por término medio, un mes en el aire y luego cayendo sobre la superficie de manera gradual, estando relacionado con el nivel de precipitaciones (Walling *et al*, 1993; Fry *et al*, 1986), pero 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 la deposición seca.

Estas diversas formas de precipitación radiactiva contienen varios cientos de radionúclidos diferentes, pero sólo unos pocos inciden significativamente sobre el hombre, a la vez que la mayoría se producen en cantidades muy pequeñas o se desintegran a gran velocidad. Tan sólo cuatro contribuyen en más del uno por ciento a la dosis equivalente efectiva recibida por la población mundial en su conjunto. Tales radionúclidos son el Carbono-14, el Cesio-137, el Circonio-95 y el Estroncio-90 (UNSCEAR, 1988).

El Circonio-95 ya ha perdido la práctica totalidad de su actividad, desde la realización de las pruebas nucleares mencionadas anteriormente debido a que su período de semidesintegración es de solo 64 días. El Cesio-137 y el Estroncio-90 que tienen ambos un período de semidesintegración de unos 30 años, perderán la mayor parte de sus actividades en el próximo siglo. Sólo el Carbono-14, con un período de semidesintegración de 5730 años, permanecerá activo en un futuro lejano. El Carbono-14 constituye un caso especial, ya que como se indicó en el apartado II.2.1 este radionúclido también se forma de modo continuo y natural en la atmósfera, no siendo diferenciable el que se forma de modo natural del que lo hace artificialmente. Es decir, de los diversos radionúclidos generados en las explosiones atmosféricas para probar armas nucleares, solo tres siguen estando presentes en la precipitación radiactiva actual (fallout), tales radionúclidos son ^{137}Cs , ^{90}Sr y ^{14}C .

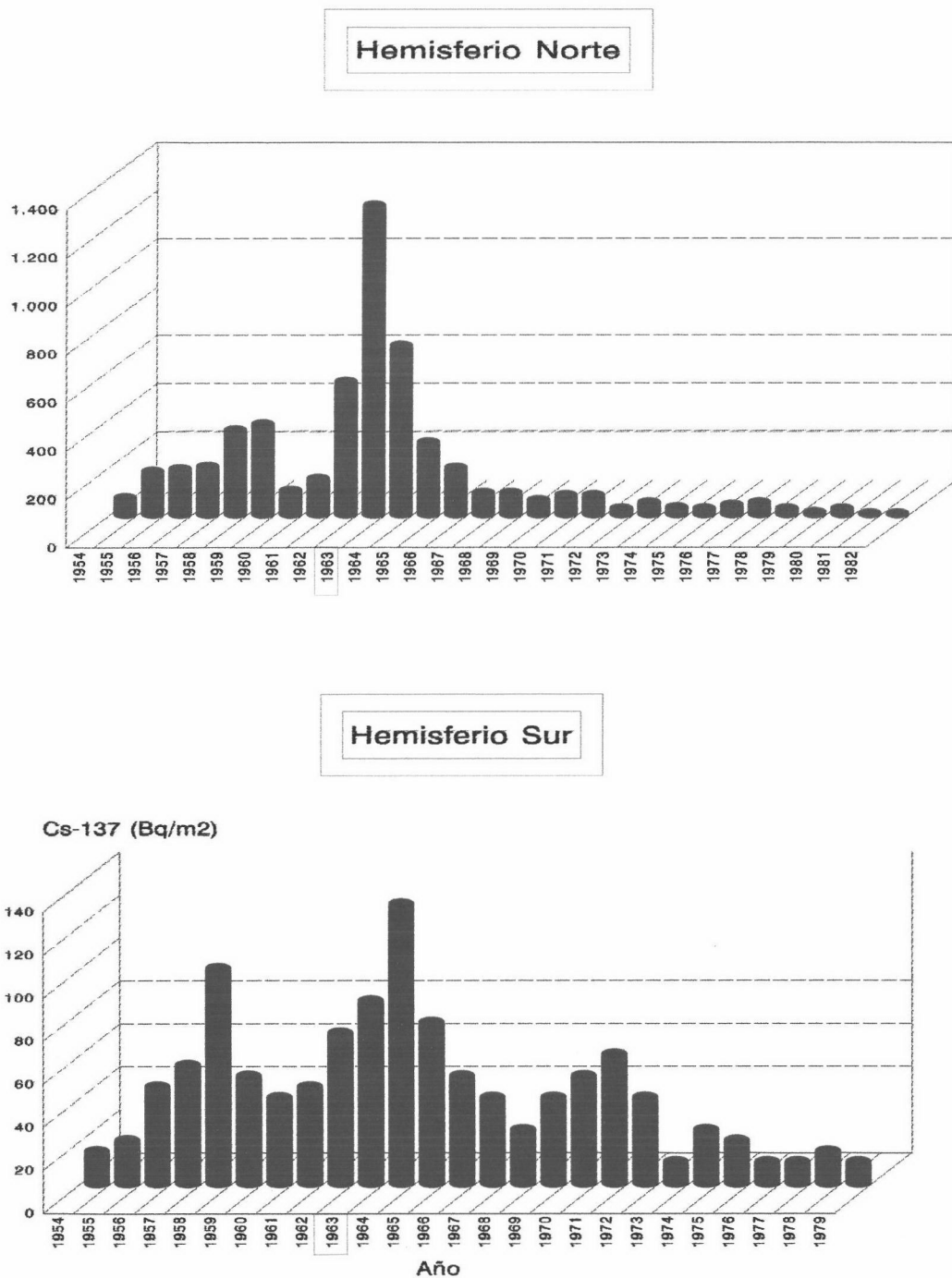


Figura 8. Evolución temporal del depósito del ¹³⁷Cs procedente de las pruebas atmosféricas de las armas nucleares en los Hemisferio Norte y Sur (Walling et al., 1993)

II.3.2. PRODUCCIÓN DE ENERGÍA.

El funcionamiento normal de las instalaciones nucleares emite muy poca radiación al medio ambiente. De ahí que, antes de que la central comience a funcionar, se estudie el fondo radiológico de la zona. Durante la explotación, se ejerce una vigilancia ambiental para comparar los resultados de sus medidas con el fondo y poder determinar la más mínima influencia de la instalación sobre la zona. Por lo tanto, las centrales nucleares mantienen durante su operación un Plan de Vigilancia Radiológica Ambiental (PVRA) destinado a conocer cuál es el impacto ambiental del funcionamiento de la central y detectar cualquier anomalía que pudiera presentarse (BOE, 1972). Para ello se realiza una serie sistemática de toma de muestras de aire, suelo, agua, cultivos, peces, leche y carne, dentro de un radio de 30 Km alrededor de la central y se analizan los isótopos radiactivos presentes en las muestras que pudieran proceder de los efluentes de la central. Existen unas guías publicadas por la Junta de Energía Nuclear (JEN) cuyas competencias las posee actualmente el CSN (BOE, 1980) en las cuales se recomiendan los métodos a seguir (GSN-03; GS-1.4). Para el control de los resultados de los PVRA, realizados por los responsables de las instalaciones nucleares, el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) realiza una toma de muestras de contraste y encarga a un laboratorio especializado (e independiente) la realización de la medida de esas muestras.

En caso de accidente en una central nuclear, los productos de fisión y el resto de material, fisionable, estructural o de soporte, alcanza temperaturas elevadas que lo llevan a fase gaseosa y lo difunden rápidamente. Dependiendo de las condiciones iniciales, el mecanismo de transporte funciona de distintas maneras pues estratosfera, troposfera, movimientos de aire, lluvia, etc, provocan a través de diversos procesos que varían para cada radionúclido y para sus distintas formas físico-químicas, una difusión en toda la biosfera. Los principales radionúclidos incorporados en caso de accidente en una central nuclear son:

^3H , ^{14}C , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{85}Kr , ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{95}Zr , ^{106}Ru , ^{131}I , ^{137}Cs , ^{140}Ba , etc.

La presencia en el medio ambiente de estos radionúclidos es controlada en nuestro país por el CSN a través de los laboratorios asociados al Proyecto REVIRA. De estos radionúclidos el ^{131}I es el primero en detectarse en el ambiente tras emisiones de productos de fisión de reactores o de detonaciones nucleares, al ser liberado como gas, por eso se controla semanalmente la posible presencia de este radionúclido mediante la medida semanal de cartuchos de carbón activo usados para retenerlo. Los radioyodos pueden ser inhalados si el individuo se encuentra inmerso en una nube pasajera pero la mayor exposición se da como resultado de la deposición del ^{131}I en los pastos. En el Laboratorio de Radioquímica y Radiología Ambiental ubicado en el departamento de Química Inorgánica de la Universidad de Granada, en el período 1993-1997, correspondiente a esta Memoria, sólo se han detectado los isótopos ^{137}Cs y ^{90}Sr en muestras de suelo. Lo cual es acorde con lo obtenido en otros lugares de España y del mundo, ya que en este medio estos radionúclidos se han ido depositando y acumulando desde el comienzo de la deposición radiactiva (fallout), sin que se hayan desintegrado lo suficiente como para no ser detectados, dado su largo período de semidesintegración, del orden de 30 años.

A pesar de que el riesgo de accidente en una central nuclear es muy bajo, se han producido dos accidentes relevantes en los últimos 50 años, el de Three Mile Island (TMI) en Harrisburg, Pensilvania en 1979 y el de Chernobil en la antigua URSS en 1986. La diferencia principal entre ambos accidentes es que en el de TMI no hubo un escape radiactivo grande al exterior y los efectos radiológicos sobre la población cercana a la central fueron muy bajos, se produjo un incremento del 1.5% en la dosis equivalente anual, la cual representaba un riesgo mínimo de producción de efectos estocásticos en dicha población (Barrachina Gómez *et al.*, 1993). El accidente de Chernobil ha sido calificado como el

accidente más devastador en la historia de la energía nuclear. Gran cantidad de material radiactivo (10^{18} Bq) fue liberado al medio ambiente, particularmente, durante los primeros 10 días. La deposición radiactiva se produjo principalmente en tres de los estados soviéticos más próximos a la central, aunque el material radiactivo fue detectado en niveles muy bajos en prácticamente todo el Hemisferio Norte. Entre las consecuencias de este accidente debemos destacar el aumento del cáncer de tiroides entre los niños de las áreas más afectadas, debido a los radioyodos liberados en el accidente. No obstante, no se ha detectado aumento en el número de afectados por leucemia ni en otras enfermedades malignas debido al accidente (IAEA, 1997).

II.4. RADIONÚCLIDOS PRESENTES EN MUESTRAS AMBIENTALES.

Las muestras ambientales que se presentaran en la presente Memoria son muestras de aire, agua y suelo, por lo tanto a continuación se describen los radionúclidos que nos podemos encontrar en tales medios.

II.4.1. MUESTRAS ATMOSFÉRICAS.

En la atmósfera pueden identificarse, entre otros, los radioisótopos que se listan en la tabla V en la cual se especifica la forma de desintegración y el origen de los mismos.

Casi toda la radiactividad atmosférica natural la producen principalmente ^{222}Rn y ^{220}Rn (torón) y sus productos de desintegración (^{210}Pb). Estos

radionúclidos son emitidos a la atmósfera desde la litosfera e hidrosfera como productos de desintegración del Uranio y Torio. La baja radiactividad del aire oceánico es resultado del bajo contenido en Radio y Torio del agua del océano.

Tabla V. Radionúclidos presentes en muestras atmosféricas (**Rankama, 1963**).

Radionúclido	Modo de desintegración	Origen
^3H	β^-	Cosmogénico. Explosiones nucleares y aportaciones recientes de las industrias nucleares.
^7Be	EC	Cosmogénico.
^{14}C	β^-	Cosmogénico. Explosiones nucleares
^{40}K	$\beta^- \beta^+ \text{EC}$	Resuspensión desde el suelo.
^{90}Sr	β^-	Remanente de explosiones nucleares.
^{137}Cs	β^-	Remanente de explosiones nucleares.
^{210}Pb	β^-	Exhalación del Radón-222.
^{214}Bi	$\beta^- \alpha$	Exhalación del Radón-222.
^{214}Pb	β^-	Exhalación del Radón-222.

La radiactividad atmosférica producida por el ^{222}Rn y ^{220}Rn depende del contenido y de la velocidad de escape de la roca y del suelo, así como de la geología y petrología del área fuente. El contenido en Radón y Torón es alto en tiempos de calma y de aire húmedo, pero después de períodos de viento y lluvia tiende a ser bajo. La radiactividad también varía con la localidad, altura, época del año y variaciones de factores meteorológicos tales como condiciones de viento, temperatura y presión barométrica (**Martín-Salas et al., 1979; Dueñas et al., 1994**).

Los productos de desintegración del Radón y Torón que son sólidos, son atrapados por los aerosoles, gotitas de las nubes y núcleos de condensación que

están siempre presentes en la atmósfera y permanecen suspendidos en ésta hasta que son eliminados por la gravedad o principalmente por las precipitaciones.

Los radionúclidos artificiales y en particular el ^{137}Cs y el ^{90}Sr , al proceder de las explosiones nucleares atmosféricas o de los escapes en las centrales nucleares, se encuentran en las muestras de aerosoles en cantidades extremadamente bajas, por lo cual rara vez en condiciones normales, se logra medir dichas actividades netas por encima del LID.

De los diversos radionúclidos presentes en la atmósfera dedicaremos un apartado al ^7Be , por centrarse el estudio realizado en muestras atmosféricas que se presenta en esta Memoria en este radionúclido.

II.4.1.1. Be-7 en Muestras Atmosféricas.

El ^7Be es un radionúclido cosmogénico producido en las capas atmosféricas, troposfera y estratosfera, con máximo de producción cerca de los 15-20 Km y decrece de forma aproximadamente exponencial con la altitud (Arnold *et al.*, 1955; Lal *et al.*, 1967; Feely *et al.*, 1989). El Be formado a esta altura reacciona para formar BeO y/o $\text{Be}(\text{OH})_2$ los cuales se difunden en la atmósfera hasta que encuentran partículas de polvo a las que adherirse. La mayoría de las partículas de polvo en la parte superior de la atmósfera forman núcleos de condensación que dan lugar a las nubes y su ^7Be se incorpora a las distintas formas de precipitación (Papastefanou *et al.* 1994). La difusión vertical, la caída gravitatoria y la atracción electrostática son menos importantes en la eliminación de ^7Be de la atmósfera.

El ^7Be se produce en un alto porcentaje, el 70%, en la estratosfera (Kathren R.R., 1984), con un $t_{1/2}=53,4$ d suficientemente grande para permitir una buena medida de su emisión gamma y que se incorpora a la tierra por los mismos procedimientos que los radionúclidos artificiales: la deposición seca o gravimétrica y la precipitación con la lluvia.

Una vez que el ^7Be se deposita sobre la superficie terrestre entra en el ciclo geoquímico del Be.

El ^7Be tiende a asociarse con partículas de aerosoles con diámetro entre 0,04 y 2 μm . En estos pequeños aerosoles, el ^7Be puede subsiguientemente entrar en el entorno marino, terrestre y vegetal vía deposición seca o húmeda (Papastefanou *et al.*, 1994; Bondietti *et al.*, 1987; Wallbrink *et al.*, 1994; Ishikawa *et al.*, 1995; Dibb, 1990).

Como ya se indicó en el apartado II.2.1, existe un efecto de latitud sobre la radiación cósmica que se refleja en los valores del ^7Be encontrados en diferentes países (Feely H.W. *et al.*, 1989), algunos de estos valores se presentan en la tabla VI .

También se han observado variaciones estacionales en el ^7Be atmosférico, detectándose valores máximos en los meses de verano para latitudes medias, debido a que se produce un incremento del transporte vertical dentro de la troposfera (Feely H.W. *et al.*, 1989; Tremblay J. *et al.*, 1993; Dibb, 1990; Baeza *et al.*, 1996).

También se aprecia diferencia en concentraciones entre la troposfera y la estratosfera debida, al incremento del flujo de rayos cósmicos con la altitud. En la troposfera, dado que la tasa de producción es pequeña y que se produce un mezclado rápido (tiempo de residencia medio 30 días) resultan

concentraciones de ^7Be aproximadamente de 100 veces menores que las de la estratosfera. Por tanto, es necesaria únicamente una pequeña contribución estratosférica para producir grandes cambios en las concentraciones observadas de ^7Be a nivel del suelo (**Bleichrodt J. F. 1978; Papastefanou et al., 1994; Sato et al., 1994**). Adicionalmente a la baja producción inicial, la concentración en la troposfera es reducida continuamente por el efecto de la lluvia. (**Schumann et al., 1963; Feely et al., 1989; Sato et al., 1994; Wallbrink et al., 1994; Ishikawa et al., 1995**).

Tabla VI. Concentraciones de ^7Be detectadas en muestras de aire superficial de diferentes latitudes (**Feely et al., 1989**).

Lugar	Latitud	Longitud	Altura (m)	Actividad (mBq/m ³)
Thule (Groenlandia)	76°36'N	68°35'W	259	3.55 ± 0.18
Moonsonnee (Ontario)	51°16'N	80°30'W	10	3.14 ± 0.07
Tracy (California)	37°39'N	121°32'W	392	5.07 ± 0.26
Miami (Florida)	25°49'N	80°17'W	7	5.29 ± 0.11
Balboa (Panamá)	8°58'N	79°34'W	23	2.40 ± 0.15
Guayaquil (Ecuador)	2°10'S	79°52'W	7	1.74 ± 0.04
Samoa Americana	14°15'S	170°34'W	77	2.63 ± 0.07
Antofagasta (Chile)	23°37'S	70°16'W	31	4.14 ± 0.07
Santiago (Chile)	33°28'S	70°42'W	520	5.07 ± 0.11
Polo Sur	90°00'S	----	2800	4.51 ± 0.15

Así pues, en las variaciones de concentración del ^7Be parecen influir los siguientes procesos atmosféricos (**Arnold et al., 1955; Feely et al., 1989; Baeza et al., 1996**):

- **Intercambio estratosfera-troposfera* de las masas de aire.
- **Transferencia vertical de aerosoles* en la troposfera desde la tropopausa, a nivel de las nubes o por debajo.
- **Mezclado norte-sur*, debido a la gran diferencia entre las tasas de producción entre altas y bajas latitudes.
- **Circulación este-oeste*, que juega también un papel importante debido a las diferencias entre latitud geográfica y geomagnética.
- **Frecuencia de lluvias intensas*.

La variación en la concentración de ^7Be atmosférico es una función complicada de todos ellos puesto que cada uno de estos procesos tiene su propio ciclo estacional y no ocurren sistemáticamente ni en el tiempo ni en el espacio.

El ^7Be ha sido reconocido como una potente herramienta en estudios descriptivos de procesos medioambientales como: velocidad de deposición de aerosoles (Young *et al.*, 1974; 1980), tránsito y tiempo de residencia en la troposfera de los aerosoles portadores de radionúclidos naturales y artificiales (Bleichrodt, 1978), determinación de ozono atmosférico a nivel del suelo utilizando la relación $^7\text{Be}/\text{Ozono}$ (Dutkiewicz *et al.*, 1979), estudio de los mecanismos de intercambio estratosfera-troposfera como trazador del aire estratosférico (Viezee *et al.*, 1980), etc.

Según Gold *et al.* (1964) los niveles de ^{210}Pb , ^7Be y productos de fisión a menudo varían en el mismo sentido a pesar de sus diferentes orígenes y distribución en la atmósfera. Los radionúclidos artificiales que son inyectados en la estratosfera son susceptibles de mezclarse con radionúclidos cosmogénicos, tales como el ^7Be . Cuando el aire estratosférico alcanza la troposfera, los productos de fisión (como el ^{137}Cs) y los radionúclidos cosmogénicos (como el ^7Be) también son transportados a las capas altas

troposféricas. Una vez allí, el ^{137}Cs puede verse afectado por los mismos procesos que el ^7Be ; por lo tanto, si disponemos de estudios sobre los factores que controlan las variaciones en ^7Be disponemos también de estudios sobre los factores que controlan las variaciones de los radionúclidos artificiales en los medios considerados.

II.4.2. MUESTRAS DE AGUA

Dentro de este apartado distinguiremos dos tipos de muestras de agua, las procedentes del agua de lluvia y las procedentes de agua subterránea, que son las que se incluyen en esta Tesis.

II.4.2.1. Agua de lluvia.

Los radionúclidos presentes en el agua de lluvia proceden principalmente de la troposfera, ya que los radionúclidos de período corto que se forman en la estratosfera se desintegran antes de alcanzar la troposfera debido a que el intercambio entre la estratosfera y las capas bajas de la atmósfera es lenta.

Mediante la lluvia se produce un arrastre de aerosoles presentes en la atmósfera hacia el suelo (deposición húmeda), llevándose consigo los descendientes del Rn que se hubieran adherido, así como otros radionúclidos presentes en la atmósfera ya sean de origen natural, como el ^7Be o el ^{210}Pb , o artificial (^{137}Cs , ^{90}Sr). La "efectividad" de la lluvia para arrastrar estos aerosoles depende del tamaño de las gotas de agua y éste a su vez, de la intensidad instantánea de lluvia de una forma no exactamente lineal (Ortega

et al., 1994). Los estudios sobre la deposición de ^7Be por vía seca muestran que ésta es muy pequeña comparada con la deposición producida por la lluvia (Rufo M.M., 1994; Wallbrink *et al.*, 1994; Schuman *et al.*, 1963). Solo el 10% de la deposición total de ^7Be se produce por vía seca (Olsen *et al.*, 1985; Brown *et al.*, 1988).

Engelmann (1968) distinguió dos mecanismos en la deposición de aerosoles por el agua de lluvia: barrido (wash-out) y lavado (rain-out). En el proceso de barrido las gotas de lluvia o los copos de nieve arrastran los aerosoles que hay en la capa de aire debajo de la nube. En el lavado las gotas de agua o copos de nieve contienen los aerosoles presentes en la atmósfera durante su formación (Ishikawa *et al.*, 1995).

Los procesos de lavado de los aerosoles atmosféricos son especialmente importantes en lugares con grandes variaciones estacionales de las lluvias (Baeza *et al.*, 1996). Murakami *et al.* (1981; 1983) publicaron que la deposición de aerosoles producida por la nieve es más efectiva la producida que por las gotas de lluvia en los procesos de lavado. El barrido es el mecanismo predominante al comienzo de una nevada o de un proceso de lluvia, mientras que el lavado es más importante desde la mitad hasta el final (Ishikawa *et al.*, 1995).

Los mecanismos involucrados en el lavado por precipitación han sido tratados matemáticamente por numerosos investigadores, siendo igualmente numerosos los trabajos publicados describiendo el fenómeno (Brown *et al.*, 1988; Ishikawa *et al.*, 1995; Olsen *et al.*, 1985; Slinn, 1984; Young *et al.*, 1974; Wallbrink *et al.*, 1994). Se ha estudiado la efectividad en el lavado de la atmósfera por dos procesos de lluvias diferentes, un proceso de larga duración y baja intensidad y otro de corta duración y gran intensidad. En ambos procesos las máximas concentraciones se obtuvieron en el primer litro

analizado, conteniendo éste entre un 27-34% de la actividad total depositada (Wallbrink *et al.*, 1994).

Se ha observado una correlación inversa entre la actividad específica y la cantidad de lluvia (Bleichrodt, 1978; Baeza *et al.*, 1996).

Una vez que las partículas han sido depositadas en el suelo, pueden ser resuspendidas como resultado de la acción del viento. Este es otro de los aspectos del problema general de la radiactividad generada en el aire. Sehmel (1984) ha listado varias decenas de factores que pueden influir en la resuspensión, incluyendo las características específicas del suelo, superficies, topografía y meteorología.

II.4.2.2. Agua subterránea.

Desde el punto de vista hidrogeológico, los radionúclidos más importantes en nuestro estudio son ^{222}Rn y el ^{226}Ra , los cuales proceden del ^{238}U . A continuación describiremos brevemente la presencia de estos radionúclidos naturales en la hidrosfera (Davis *et al.*, 1971). Las aguas ácidas, que son comunes en minas que contienen rocas ricas en minerales sulfurados suelen contener radionúclidos disueltos (Gundersen *et al.*, 1995).

II.4.2.2.1. Uranio

El Uranio está presente en distintas aguas subterráneas en cantidades traza. Las cantidades encontradas varían entre $5 \cdot 10^{-5}$ y $1 \cdot 10^{-2}$ ppm. Tales concentraciones varían ampliamente respondiendo a variaciones de pH, potencial redox y la temperatura. **Barker y Scott (1958)** encontraron que las aguas subterráneas ricas en HCO_3^- eran también más ricas en Uranio debido a la formación del complejo soluble carbonato-uranilo. Las aguas que circulan por esquistos que contienen sulfuros poseen cantidades importantes de Uranio, así como las aguas que circulan por rocas graníticas (**Randall et al., 1995; Asikainen et al., 1979; Asikainen et al., 1981**).

II.4.2.2.2. Radio

El isótopo más abundante del Ra es el ^{226}Ra que pertenece a la familia del ^{238}U ; es geoquímicamente similar al Ba y por ello es rápidamente retenido por las arcillas y los coloides. **Riese (1982)** encontró que la adsorción del Radio se inhibe a bajo pH y a grandes concentraciones de iones Ca^{+2} ya que los iones Ca^{+2} y H_3O^+ compiten con el Radio por los lugares de adsorción. En la naturaleza coprecipita con el Ba, Ca y Mn. De sus características químicas se deduce su inmovilidad relativa en la hidrosfera y explica su deficiencia respecto al U en las aguas subterráneas. El valor límite de 0.1 Bq/l fijado (**BOE, 1990**) para las aguas potables es sobrepasado por muchas aguas subterráneas, siendo bastante altas las concentraciones detectadas en las aguas subterráneas que ascienden desde grandes profundidades a lo largo de sistemas de fallas, así como en el agua procedente de rocas ricas en U. Por el contrario, la mayor parte de las aguas procedentes de acuíferos

ligados a rocas sedimentarias tienen por lo general, concentraciones de Ra inferiores al límite (Michel, 1990).

II.4.2.2.3. Radón

El Rn es un gas noble radiactivo que posee 12 isótopos de vida corta; de ellos, el ^{222}Rn es el más abundante y tiene un período de semidesintegración de 3,8 días.

En los acuíferos se producen continuamente pequeñas cantidades de ^{222}Rn que proceden de la desintegración del ^{226}Ra del suelo en contacto con dicho acuífero. La mayor parte del Rn que entra en contacto con el agua subterránea se disuelve y permanece en este estado hasta que el agua entra en contacto con la atmósfera o hasta que se desintegra; no obstante, su corto período de semidesintegración junto con el bajo valor de la velocidad de desplazamiento del agua subterránea permite al Rn en disolución estar en equilibrio con las trazas de Ra presentes en las rocas o suelos donde se ubica el acuífero.

Una vez que el agua subterránea afluye a lagos, ríos u otras acumulaciones artificiales de agua, el contenido en Rn se reduce considerablemente debido a la cantidad limitada de Radio que hay en contacto con el agua. Además, los gases existentes en el agua alcanzan el equilibrio con los atmosféricos por lo que la mayor parte del Rn del agua pasa a la atmósfera, la cual contiene solamente trazas de este gas. Arndt *et al.* (1953) señalaron que el agua en los manantiales de Arkansas perdía el 41% de su Rn después de haber fluido algo más de 1 m en superficie, Rogers (1958) encontró descensos rápidos de Rn similares en corrientes

turbulentas de las montañas de Utah y también se ha señalado dicha pérdida en estudios más recientes (**Gundersen L.C.S. et al., 1995**).

Las aguas subterráneas con mayor contenido de Rn están habitualmente asociadas a depósitos de U, a aguas que ascienden rápidamente a través de fallas y las aguas termales (**Biancotto et al., 1991; Michel, 1990**).

Los acuíferos se tipifican en 3 categorías, según sus valores medios en ^{222}Rn (**Michel J. 1990**):

Acuíferos de rocas ígneas:

Graníticos > 300 Bq/l (valor medio) de ^{222}Rn
 Basálticos 13 Bq/l (valor medio) de ^{222}Rn

Acuíferos de rocas metamórficas:

Bajo metamorfismo 274 Bq/l (valor medio) de ^{222}Rn
 Medio metamorfismo 118 Bq/l (valor medio) de ^{222}Rn
 Alto metamorfismo 54 Bq/l (valor medio) de ^{222}Rn

Acuíferos de rocas sedimentarias:

Clásticas, no consolidadas 15 Bq/l (valor medio) de ^{222}Rn
 Carbonatadas < 4 Bq/l (valor medio) de ^{222}Rn

Tales valores son, pues, el resultado de la interacción entre el agua y las rocas que la rodean, por lo que estarán relacionadas con el tipo de roca y la cantidad y distribución de uranio y torio en los materiales que constituyen los acuíferos y depósitos superficiales (**Hess et al., 1985**), así como con la magnitud de los distintos procesos de lixiviación, exhalación, emanación, disolución, oxidación, adsorción, precipitación,

etc. que pueden tener lugar. La diferente intensidad de estos procesos depende, a su vez, del flujo del agua, de los tiempos de permanencia de contacto roca-agua y de las condiciones meteorológicas, por lo que cabe esperar variaciones naturales de dichas concentraciones según la época del año (Olof, 1970).

El ^{222}Rn presente en las aguas naturales puede deber su origen a dos fuentes (Astudillo *et al*, 1985):

-Radón producido por las rocas y suelos en los que se encuentran las surgencias de tales aguas, ya que el ^{222}Rn se forma a partir del ^{226}Ra presente en dicho suelo.

-Radón que se encuentra en procesos de difusión en ambientes profundos. Su incorporación al agua se producirá en función del equilibrio físico-químico que se establezca, dependiente especialmente de las condiciones de presión y temperatura y en menor grado de la salinidad del agua.

En acuíferos de arenas, que es un material donde hay una filtración lenta de agua y que tiene una mayor porosidad, la adquisición de Rn se realiza por un mecanismo de transporte.

En los acuíferos de calizas carbonáceas, el agua puede disolver Rn al fluir por las superficies de las rocas y por percolación a través de la caliza. La percolación del agua elimina Rn de las fracturas y poros de las rocas por el mecanismo de transporte lo que hace que las aguas que fluyan por rocas de baja porosidad o sin fracturas es poco probable que adquieran un elevado contenido de Rn. El contenido de Rn de las aguas subterráneas viene determinado por la naturaleza física de la roca y del

acuífero más que por el contenido en Uranio de la formación (**Andrews et al., 1972**).

El Rn disuelto en agua es una de las fuentes que suministra ^{222}Rn en el interior de los edificios (**Quindos et al., 1995**). Sin embargo dicha fuente sólo es importante en localidades en las que el agua potable procede de aguas subterráneas, ricas en ^{222}Rn . A pesar de los efectos perniciosos que pueden presentar para la salud, diversos autores señalan el valor terapéutico que presentan las bajas dosis suministradas por el ^{222}Rn disuelto en el agua (**Armijo et al., 1994; Soto et al., 1995b; Steinhäusler F., 1988; Barnett et al, 1992; Kito M.E., 1994; Kito et al, 1995; Loughtin J., 1990; Mills W.A., 1990; Schönhofer et al, 1987; Schönhofer F., 1992; Soto et al, 1988; Soto et al, 1992; Soto et al, 1995a; Soto et al, 1996**).

II.4.2.2.4. Potasio-40

En la naturaleza, aproximadamente el 0,012 % del K es el radioisótopo ^{40}K y, aunque la presencia de éste justifica entre el 5 y 50 % de la actividad natural de las aguas potables, la carencia de altos contenidos en el agua hacen que en principio no sea uno de los radionúclidos más peligrosos.

II.4.3. MUESTRAS DE SUELOS

Las rocas y los suelos de la corteza terrestre contienen fundamentalmente concentraciones variables de uranio, torio, actinio, sus descendientes y también

⁴⁰K. La concentración con que aparecen los elementos de las cadenas radiactivas en diversas formaciones geológicas parece ser consecuencia del proceso de solidificación magmática de aquellas. En general, una radiactividad alta está asociada a formaciones antiguas de rocas metamórficas o ígneas, apareciendo en concentraciones menores en rocas sedimentarias. Cualquier muestra de materiales de la corteza terrestre presenta una radiactividad que se puede fácilmente detectar y medir (Schultz, 1965; Fernández *et al.*, 1985; Malanca, 1994) y que procede de los elementos radiactivos que se hallan dispersos bastante uniformemente en dichos materiales.

El uranio, por sus propiedades químicas, está presente en todo tipo de materiales geológicos, no existiendo, a causa de su reaccionabilidad química, en forma libre en la naturaleza. Sus valencias más estables son la +4 y +6, que corresponden, respectivamente, a los iones U^{+4} y UO_2^{++} (Garzón L, 1978). En uno u otro estado de oxidación se presenta una gran variedad de especies mineralógicas, entre las que cabe destacar, la uranita, la pechblenda, la autunnita, la torbernita y la carnotita.

El Torio es otro elemento minoritario, aunque algo más abundante que el uranio en la litosfera (8 ppm frente a 3 ppm de uranio en promedio). Es también un elemento químicamente activo y bastante difundido por todo tipo de materiales geológicos; el único ión estable con el que se presenta en la naturaleza es el ión Th^{4+} , con el cual forma unos pocos minerales diferentes.

El Potasio es un componente fundamental de las rocas en la corteza terrestre, principalmente en forma de silicatos y de cloruros; tiene tres isótopos, dos de ellos, (el ³⁹K y el ⁴¹K) estables y el tercero, (el ⁴⁰K) radiactivo. Este último se presenta en una proporción del 0,0118 %, lo que determina una concentración media de dicho radionúclido en la corteza terrestre del mismo orden que la del uranio (2,4 ppm). Las concentraciones de ⁴⁰K en la naturaleza pueden variar desde

0,1 % en las calizas hasta el 3,5 % en algunos granitos, presentando una concentración intermedia en las areniscas (1 % o inferior). En las rocas de la corteza, la actividad media del ^{40}K es de unos 630 Bq/Kg, mientras que algunos granitos, especialmente aquéllos que presentan un bajo contenido en calcio, y las sienitas pueden presentar concentraciones que exceden los 1850 Bq/Kg.

II.4.3.1. Radiactividad de los diversos tipos de rocas.

Las rocas se clasifican en a) Rocas ígneas b) Rocas sedimentarias c) Rocas metamórficas. Las primeras proceden de la solidificación, por enfriamiento, de una masa fundida, denominada magma que consiste en una mezcla compleja de silicatos fundidos. Las rocas sedimentarias se forman a partir de las preexistentes en la superficie de la tierra mediante lo que se denomina ciclo erosivo. El ciclo erosivo comprende tres procesos, a saber: erosión, transporte y sedimentación. Las metamórficas proceden de alguno de los dos tipos anteriores que hayan sufrido procesos de metamorfismo, es decir, valores anormalmente elevados de presión y/o de temperatura. Cuando, además, se producen intercambios de fluidos hidrotermales que afectan a la composición de la roca original, se habla de metasomatismo.

Dentro de las rocas ígneas se encuentran las intrusivas y las efusivas, ya sean de naturaleza ácida o básica; dentro de las rocas sedimentarias se distingue entre rocas calcáreas, carbonadas, fosfatadas, arcillosas, etc; las rocas metamórficas se dividen en diversos grados de metamorfismo definidos por los tipos de minerales que se forman durante el calentamiento y la presurización que causa el metamorfismo de la roca.

II.4.3.1.1. Rocas ígneas.

El granito (prototipo de las rocas ígneas, ácidas e intrusivas) está formado por tres componentes mayoritarios, denominados principales: cuarzo, feldespato y mica. También existen otros componentes denominados minerales accesorios y otros accidentales, entre los cuales se incluyen las inclusiones microscópicas o submicroscópicas constituidas generalmente por cristales de UO_2 o ThO_2 . Los estudios realizados para determinar la distribución de la radiactividad de un granito han permitido establecer que ésta se halla preferentemente localizada en las inclusiones, fisuras y, más o menos dispersa, en los materiales esenciales. La distribución de los minerales accesorios en el granito no es uniforme, hallándose particularmente presentes en la biotita. Aproximadamente la mitad de la radiactividad de un granito radica en los minerales accesorios. La radiactividad de los minerales principales de un granito representa el 30 % del total. En ellos el Uranio y el Torio se encuentran bien sustituyendo isomórficamente al ión Ca^{+2} o bajo la forma de inclusiones de óxidos de tamaño ultramicroscópico. El resto de la radiactividad, es decir un 20 %, se encuentra en fracturas o intersticios. La radiactividad global encontrada en granitos es del orden de 3 ppm para el Uranio y de tres a cuatro veces superior para el Torio.

El contenido en Uranio y Torio de las rocas básicas es de 1-2 ppm de Uranio y de 3-4 ppm para el Th. En este tipo de rocas los radioelementos U y Th se encuentran preferentemente diluídos en la masa de una manera uniforme.

II.4.3.1.2. Rocas sedimentarias

El Uranio que queda en libertad por meteorización de rocas ígneas (y también de metamórficas y sedimentarias) se redeposita posteriormente singenética o epigenéticamente en diversas clases de rocas y sedimentos, formando óxidos hidratados, fosfatos y silicatos y, a veces, es lavado de ellos, probablemente como sales complejas solubles de uranilo.

Los compuestos uraníferos precipitan usualmente en medios fuertemente reductores. Pueden ser adsorbidos por precipitados gelatinosos de sílice, hierro, aluminio y manganeso, minerales arcillosos y compuestos orgánicos.

El contenido de Uranio en las rocas calcáreas suele alcanzar las 3 ppm, encontrándose la radiactividad en forma difusa.

Los restos de plantas originan dos tipos de sedimentos carbonosos: los húmicos (carbones) y los sapropélicos (cannels), que determinan un bajo contenido en hidrógeno y alto en carbono y oxígeno en los primeros, y un alto de hidrógeno y carbono en los segundos. Las concentraciones más altas de uranio encontradas en rocas sedimentarias corresponden a esquistos sapropélicos negros de origen marino (black shales). En general la concentración de uranio aumenta en estos esquistos con su contenido en carbono.

Los lignitos se encuentran enriquecidos fundamentalmente en Uranio. Esto está de acuerdo con las investigaciones realizadas a fin de determinar la capacidad relativa de diversos tipos de sustancias carbonosas para extraer el uranio de sus soluciones acuosas. El resultado de estas experiencias indica que los lignitos son los más efectivos en la

retención del uranio. Casi el 100 % de dicho elemento fue extraído de una disolución acuosa de UO_2SO_4 (196 ppm) por carbones subbituminosos mediante un proceso al parecer irreversible.

Se han considerado varias fuentes posibles del enriquecimiento de uranio en carbones:

- a) Soluciones hidrotermales que ascienden a lo largo de fallas.
- b) Aguas de lavado de macizos graníticos durante su meteorización.
- c) Aguas de lavado de rocas y cenizas volcánicas.
- d) Aguas de lavado de titano-niobatos meteorizados.

A causa de que ciertas plantas concentran cantidades apreciables de uranio, hasta el punto de tener valor en la prospección de dicho elemento, podría pensarse en las plantas vivas como medio de enriquecimiento en carbones. No abogan por esta hipótesis la distribución horizontal y vertical del uranio tan irregular en las capas de carbón, las relaciones regionales y su concentración local a lo largo de fracturas y capas permeables.

La acumulación del Uranio en el carbón puede, pues, variar considerablemente de un lugar a otro, y cada depósito en estudio debe ser objetivamente considerado e interpretado en relación con la historia geológica de la región en que se encuentra enclavado.

Las rocas carbonadas presentan un contenido en Uranio que varía ampliamente, desde milésimas a centenas de ppm.

Las rocas fosfatadas contienen cantidades relativamente importantes de Uranio, del orden de algunas centenas de ppm; sin embargo el Torio prácticamente no existe en tales rocas.

Tabla VII. Contenidos en U, Th y K de las rocas ígneas y sedimentarias (Suarez-Mahou *et al.*, 1996).

Rocas	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)
Basálticas	1	4,0	0,8
Rango	0,2-4	0,5-10	0,2-2
Graníticas	3,0	12,0	3,0
Rango	1,0-7	1,0-25	2,0-6,0
Arcillosas	3,7	12,0	2,7
Rango	1,5-5,5	8,0-18	1,6-4,2
Areniscas	0,5	1,7	1,1
Rango	0,2-0,6	0,7-2	0,7-3,8
Carbonatadas	2,2	1,7	0,3
Rango	0,1-9	0,1-7	0,0-2,0

II.4.3.1.3. Rocas metamórficas

Las rocas metamórficas se consideran rocas con bajo contenido en U (2 ppm). En este tipo de rocas el factor que determina el contenido y la distribución del Uranio es la composición de la roca antes del metamorfismo más que el grado de metamorfismo (Michel J., 1990). Por lo tanto las rocas metamórficas de composición granítica serán las que tendrán una mayor concentración de Uranio encontrándose éste asociado a los minerales pesados y a los minerales ultrametamórficos que incluyen uranita y uranothorita (Schumann *et al.*, 1994).

II.4.3.2. Radiactividad de los suelos españoles.

En el Proyecto MARNA (Mapa de Radiación Natural), suscrito por el CSN y la Empresa Nacional del Uranio S.A. (ENUSA) en el que se pretende conocer los niveles ambientales de radiación gamma natural en España, se han obtenido datos en los cuales los valores altos están, en general, ligados a determinado tipo de formaciones graníticas, mientras que los más bajos corresponden a formaciones sedimentarias de origen marino. Así en el mapa radiométrico peninsular, algunos de cuyos valores se recogen en la figura 9 puede apreciarse que la repartición aparentemente caprichosa de sus fondos radiométricos obedece a los contenidos en U, Th y ^{40}K de sus suelos y rocas, observándose una buena correlación geología-radiometría, e incluso se dibuja con gran nitidez el salto radiométrico originado por la falla del Guadalquivir.

Se dan valores altos en las zonas metamórficas del oeste peninsular (Macizo Hespérico) así como en el Sistema Ibérico, Pirenaico y Bético S. Str. Dentro de los metasedimentos paleozoicos merece la pena resaltar las anomalías radiactivas positivas que presenta de forma bastante sistemática la cuarcita armoricana, tanto de Ciudad Real como en otras provincias en las que aparecen.

Dentro del Triásico, el Bunt (en su facies de areniscas rojas), es la formación que presenta mayor fondo radiométrico, el cual, se reduce mucho habitualmente tanto en las calizas del Muschelcalk como en las margas abigarradas del Keuper.



Figura 9. Mapa radiométrico peninsular (Suárez Mahou E. *et al.*, 1996)

Los materiales del Jurásico y Liasico, predominantemente calcáreos, presentan fondos bajos, al igual que ocurre con el Cretácico, salvo en las facies detríticas del Albense facies Weáldicas de Teruel, Soria, Cuenca, Guadalajara, etc...

El Terciario de las depresiones del Ebro, Tajo, Duero y Guadalquivir podría dividirse a efectos radiométricos y por su composición y extensión en varias subzonas:

- * Facies lacustres, con fondos en general bajos en los niveles carbonatados, aunque localmente pueden presentar mayor radiometría debido al aumento de contenido en arcilla y de materia orgánica. En los años 1970 se hizo un estudio de cierto detalle en las cuencas miocenas del Ebro (sector de Mequinzenza-Fayón) y de Granada (sector de Bermejales) que mostró un enriquecimiento en Uranio en los sedimentos carbonosos de las mismas. Los valores de

la relación U/Th obtenidos fueron superiores a uno, que es superior al valor de 0,4 estimado para rocas sedimentarias. Lo anterior supone la existencia de un fondo radiométrico mayor que el que hay en otras áreas sedimentarias en las que no existen tales sedimentos (**García-Rossell et al., 1970a, b,c; Gacía-Rossell et al., 1971a,b**).

- * Facies evaporíticas con fondos en general bajos, aunque no tanto como los anteriores. Eventualmente presenta anomalías radiométricas debidas a pequeñas concentraciones locales de Uranio.

- * Terciarios detríticos, en general más radiactivos. En algunas zonas (terciario del Valle del Tiétar) sus fondos son francamente elevados llegando a confundirse con los de las rocas graníticas circunvecinas de las que proceden (arcosas del Suroeste de la cuenca terciaria de Ciudad Rodrigo).

Los cuaternarios, en general, presentan fondos bajos tanto en las rañas pliocuaternarias como en terrazas y otras formaciones aluviales y diluviales (**Suárez Mahou E. et al., 1996**).

II.4.4.PELIGROSIDAD DE LOS RADIONÚCLIDOS PRESENTES EN MUESTRAS AMBIENTALES

En el BOE nº 37 de 1992 aparece el Reglamento sobre Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes, en el cual se especifican los límites de incorporación anual por inhalación y por ingestión de diversos radionúclidos. En la tabla VIII se presentan dichos límites para los miembros del público en general de algunos de los radionúclidos que se encuentran en muestras ambientales.

Por otra parte, la clasificación de los mismos según su radiotoxicidad relativa es la siguiente:

- a) Radiotoxicidad muy alta: ^{210}Pb ; ^{223}Ra ; ^{226}Ra ; ^{228}Ra .
- b) Radiotoxicidad alta: ^{90}Sr ; ^{212}Pb .
- c) Radiotoxicidad moderada: ^{137}Cs ; ^{214}Pb ; ^{212}Bi ; ^{222}Rn .
- d) Radiotoxicidad baja: ^7Be ; ^{40}K ; ^{235}U ; ^{238}U .

Tabla VIII. Límites de incorporación de radionúclidos presentes en muestras ambientales. (BOE nº37,1992)

Radionúclido	Límite de incorporación anual por inhalación (Bq)	Límite de incorporación anual por ingestión (Bq)
⁷ Be	8 · 10 ⁷ (todos los demás) 7 · 10 ⁷ (óxidos, halogenuros, nitratos)	2 · 10 ⁸
⁴⁰ K	1 · 10 ⁶	1 · 10 ⁶
⁹⁰ Sr	7 · 10 ⁴ (Compuestos solubles) 1 · 10 ⁴ (SrTiO ₃)	1 · 10 ⁵ (Compuestos solubles) 2 · 10 ⁶ (SrTiO ₃)
¹³⁷ Cs	6 · 10 ⁵	4 · 10 ⁵
²¹⁰ Pb	9 · 10 ²	2 · 10 ³
²¹² Pb	1 · 10 ⁵	3 · 10 ⁵
²¹⁴ Pb	3 · 10 ⁶	3 · 10 ⁷
²²³ Ra	3 · 10 ³	2 · 10 ⁴
²²⁴ Ra	6 · 10 ³	3 · 10 ⁴
²²⁶ Ra	2 · 10 ³	7 · 10 ³
²²⁸ Ra	4 · 10 ³	9 · 10 ³
²¹² Bi	9 · 10 ⁵ (los demás) 1 · 10 ⁶ (compuestos solubles)	2 · 10 ⁷
²¹⁴ Bi	3 · 10 ⁶	6 · 10 ⁷
²³⁵ U	5 · 10 ³ [UF ₆ ; UO ₂ F ₂ ; UO ₂ (NO ₃) ₂] 3 · 10 ³ (comp. menos solubles) 2 · 10 ² (UO ₂ ; U ₃ O ₈)	5 · 10 ⁴ (comp. solubles en agua) 7 · 10 ⁵ (comp. relativ. insolubles)
²³⁸ U	5 · 10 ³ [UF ₆ ; UO ₂ F ₂ ; UO ₂ (NO ₃) ₂] 3 · 10 ³ (comp. menos solubles) 2 · 10 ² (UO ₂ ; U ₃ O ₈)	5 · 10 ⁴ (comp. solubles en agua) 8 · 10 ⁵ (comp. relativ. insolubles)
²²² Rn	3.6 · 10 ⁷	-----
Descendientes del Rn	3.6 · 10 ⁵	-----



CAPÍTULO III: MATERIALES UTILIZADOS

III.1. DISPOSITIVOS UTILIZADOS PARA LA TOMA DE MUESTRAS.

III.1.1. MUESTREADOR PARA AIRE.

Para la obtención de las muestras de aire se ha utilizado un dispositivo similar al de las demás estaciones REVIRA, consistente en una bomba de aspiración conectada a una cabeza captora en la cual se retienen tanto las muestras de partículas de polvo como ciertos gases (^{131}I). La bomba de aspiración utilizada es de la marca Radeco, modelo AVS-28A, para muestreo continuo. El caudal se puede ajustar desde 10 hasta 100 litros por minuto; posee un rotámetro tipo venturi con una precisión de $\pm 5\%$. También tiene un medidor de tiempo que indica el tiempo real empleado en la toma de muestra ya que sólo funciona cuando la bomba está conectada. La cabeza captora, que se muestra en la figura 10, es de la marca SAIC-RADECO, modelo 2500-46 de 47 mm de diámetro. Tiene un portamuestras para filtros en la parte superior, en los cuales se colectan las partículas de polvo y para cartuchos en la parte inferior, en los cuales se adsorben los gases. Esta disposición evita que pasen partículas de polvo al cartucho.



Figura 10. Cabeza captora del muestreador de aire.



27 ENE. 2000

La bomba se instaló dentro del propio laboratorio de investigación y se le acopló un prolongador de unos 4 metros de longitud en cuyo extremo se instaló la cabeza filtrante, la cual quedó separada de la fachada la distancia indicada. Dicha cabeza filtrante va provista de una protección para evitar que se moje con la lluvia.

III.1.2. BATEA PARA COLECTAR AGUA DE LLUVIA.

Para la captación de agua de lluvia se ha utilizado una bandeja de acero inoxidable de un metro cuadrado de superficie (80 x 125 cm) y un borde de 10 cm de alto. La bandeja se instaló en la terraza del edificio en el que se encuentra el laboratorio, en la vertical del mismo. Esta bandeja se colocó sobre un soporte de hierro cuyas patas tienen distinta altura para conseguir que la pendiente sea la misma en cualquiera de los sentidos (la pata delantera izquierda es de 25 cm, la delantera derecha de 30 cm, la posterior izquierda de 32,5 cm y la posterior derecha de 37,5 cm). De este modo se logra que toda el agua se desplace hacia la esquina delantera izquierda donde se encuentra situado el orificio de salida. Este soporte va atornillado a unos bloques de ladrillo y cemento de unos 30 cm de altura para asegurar un buen anclaje frente a la acción del viento, como se muestra en la figura 11. Como ya se ha indicado, la batea tiene en la esquina delantera izquierda un tubo de salida de 1,8 cm de diámetro externo y un orificio de 1,6 cm de diámetro interno, a dicho tubo se le acopló un tubo de plástico de 1,5 cm de diámetro interno y unos 10 metros de longitud, a través del cual el agua colectada es conducida directamente a dos recipientes de 30 litros situados dentro del propio laboratorio de investigación; de este modo se puede controlar continuamente su nivel. Ambos recipientes están conectados mediante una llave en forma de Y.



Figura 11. Batea colectora del agua de lluvia

III.1.3. TOMA DE MUESTRA DE AGUA SUBTERRÁNEA.

Para la toma de muestra de aguas subterráneas se han empleado botellas de polietileno de alta densidad de 1 litro y viales de vidrio de 50 ml.

Dada la rápida pérdida del contenido en ^{222}Rn que sufren las aguas subterráneas al alcanzar la superficie, siempre que las condiciones del manantial lo han permitido hemos empleado un lastre de unos 2 kg de peso que está envuelto por una malla de alambre adaptada a cada botella y que ha hecho posible el muestreo a más de 2 m de profundidad.

Para la toma de las muestras de suelos se utiliza una plantilla de acero inoxidable de 50 x 50 cm con un borde de 5 cm. Las esquinas del mismo fueron reforzadas mediante unas chapas circulares para evitar deformaciones de los ángulos rectos de los vértices del cuadrado (figura 12).

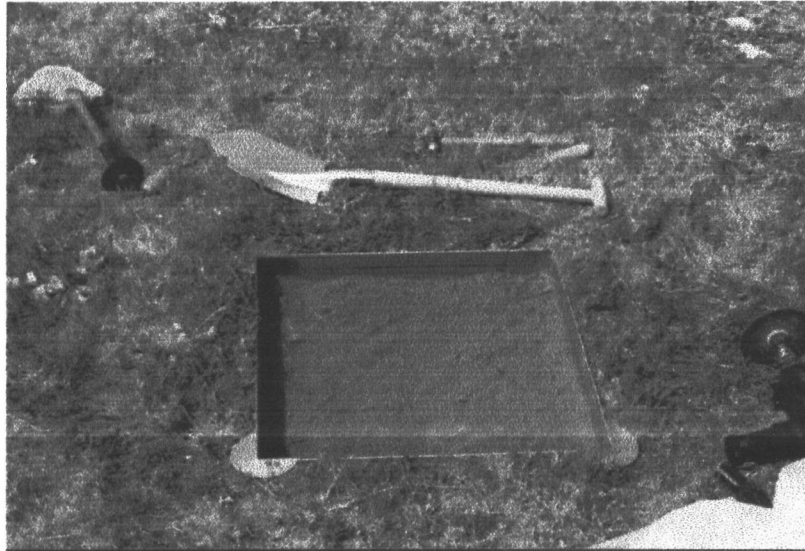


Figura 12. Plantilla para el muestreo de suelos.

III.2. PORTAMUESTRAS UTILIZADOS PARA LA MEDIDA.

III.2.1.FILTROS PARA LA RETENCIÓN DE PARTÍCULAS DE POLVO ATMOSFÉRICO.

Para la captación de partículas de polvo utilizamos unos filtros de celulosa de 47 mm de diámetro, marca Schleicher&Schuell, con eficiencia de retención

próxima al 100% para partículas de tamaño superior a 0,8 micras; el mismo sistema que se utiliza en el resto de las estaciones REVIRA.

III.2.2. CARTUCHOS PARA LA RETENCIÓN DEL ¹³¹I DEL AIRE.

Los radiyodos atmosféricos son captados con cartuchos de carbón activo, marca SAIC, tipo 0750-18, de 45 mm de diámetro, con eficiencia de retención para el Iodo molecular del 99,0% para el flujo empleado (30 l/min).

III.2.3. PORTAMUESTRAS TIPO MARINELLI DE UN LITRO DE CAPACIDAD.

Los portamuestras tipo Marinelli utilizados en este trabajo son de la marca GA-MA&ASSOCIATES, INC., modelo 130G. Las características son las siguientes:

- Material: Polipropileno.
- Dimensiones: **Altura total 15,2 cm; diámetro externo 12,9 cm; diámetro del hueco interior 7,6 cm; altura del hueco interior 7,6 cm.**

III.2.4. LÁMINA DE PLÁSTICO PARA AGUA EVAPORADA.

Este portamuestras consiste en una bolsa de plástico termorresistente, marca Reynolds. Las dimensiones de la bolsa son: 38 cm de largo y 25 cm de ancho.

III.2.5. VIALES PARA LAS MEDIDAS EN CENTELLEO LÍQUIDO.

Estos portamuestras tienen las siguientes características:

- Material: Vidrio de bajo contenido en Potasio.
- Capacidad: 20 ml.
- Dimensiones: Altura 6 cm; diámetro 2,5 cm.

III.3. PATRONES DE CALIBRADO.

III.3.1. DISOLUCIÓN PATRÓN DE ²⁴¹Am.

Este patrón nos fue suministrado por el C.I.E.M.A.T. con las características siguientes:

- Actividad total: 0,3 mCi (11100 Bq) el 1 de Abril de 1993.
- Volumen: 50 ml (aproximadamente).
- Actividad específica en volumen: $S_v=231,5 \text{ Bq/cm}^3$.
- Disolución en medio HNO₃ 1,0 M.
- Período de semidesintegración: 432.2 años.

III.3.2. DISOLUCIÓN PATRÓN PARA ESPECTROMETRÍA GAMMA.

Este patrón consiste en una mezcla de radionúclidos con unos períodos de semidesintegración relativamente largos y que producen en su desintegración gran cantidad de emisiones gamma lo cual permite obtener numerosos picos bien diferenciados entre sí y repartidos en todo el rango de energías del espectro que nos interesa (desde 80 KeV hasta 2000 KeV).

La disolución utilizada contiene los siguientes radionúclidos: ^{133}Ba , ^{60}Co , ^{137}Cs y ^{152}Eu . Fue suministrada por el C.I.E.M.A.T. con las características siguientes:

- Actividad total: 2 mCi (74000 Bq) el 1 de Abril de 1993.
- Volumen: 50 ml (aproximadamente).
- Disolución: en medio HCl 4 M.

Las características de los diferentes picos se exponen en la Tabla IX

En la figura 13 se presenta el espectro característico de este patrón, obtenido con el espectrómetro gamma.

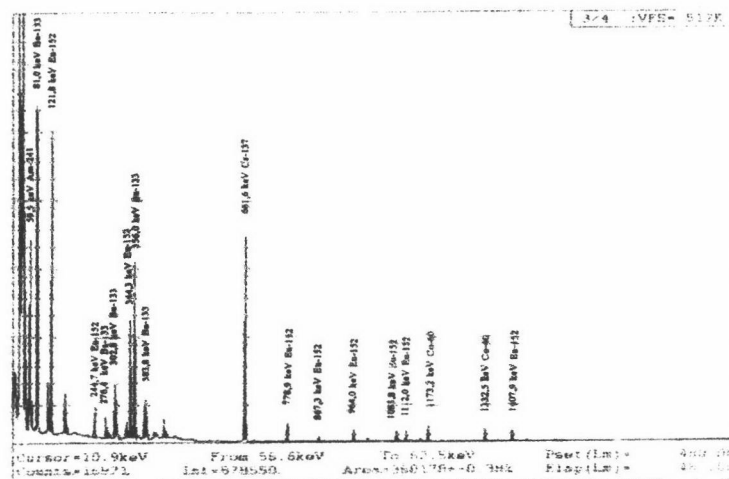


Figura 13. Espectro del cóctel gamma utilizado en la preparación de los patrones gamma.

Tabla IX Características de los radionúclidos que constituyen el coctel patrón utilizado

Radionúclido	Energía (KeV)	Intensidad	dps/g	Período (años)
Ba-133	81,0	0,330	151,5	10,50
Eu-152	121,8	0,284	127,7	13,60
Eu-152	244,7	0,075	30,7	13,60
Ba-133	276,4	0,069	29,6	10,50
Ba-133	302,8	0,178	75,4	10,50
Eu-152	344,3	0,265	117,1	13,60
Ba-133	356,0	0,605	257,2	10,50
Ba-133	383,8	0,087	40,1	10,50
Cs-137	661,6	0,900	440,7	32,20
Eu-152	778,9	0,127	57,4	13,60
Eu-152	867,3	0,042	17,5	13,60
Eu-152	964,0	0,144	67,6	13,60
Eu-152	1085,8	0,100	58,5	13,60
Eu-152	1112,0	0,133	64,3	13,60
Co-60	1173,2	1,000	116,7	5,27
Co-60	1332,5	1,000	116,7	5,27
Eu-152	1407,9	0,207	101,3	13,60

III.3.3. DISOLUCIÓN PATRÓN DE $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$.

Se trata de una disolución en la cual se encuentran ambos isótopos en equilibrio secular. Esta disolución nos fue suministrada por el C.I.E.M.A.T. con las características siguientes:

- Actividad total: 3,4 mCi (126650 Bq) el 1 de Abril de 1993.
- Volumen: 50 ml (aproximadamente).
- Actividad específica en volumen: $S_v=2533 \text{ Bq/cm}^3$.
- Disolución en medio HNO_3 1,0 M.
- Período de semidesintegración: 28.6 años.

III.4. EQUIPOS DE MEDIDA.

III.4.1. ESPECTRÓMETRO GAMMA MULTICANAL.

Este equipo de medida está constituido por:

Detector gamma de Germanio intrínseco, marca CANBERRA, tipo reverse, modelo GR-2020 7500 SL, en configuración vertical. Todas las juntas del detector son cerámicas para evitar pérdidas de vacío. Para poder medir los fotones de baja energía o rayos X, se ha sustituido una de las paredes del recipiente por una lámina de Berilio de 50 mm de diámetro y 0,5 mm de espesor. Este detector es similar en geometría a otros detectores coaxiales convencionales de Germanio con la diferencia de que sus electrodos están en una situación inversa a los convencionales de tipo coaxial, es decir, el electrodo tipo p (con impurezas de Boro) está en la zona externa y el tipo n (con Litio difundido) está en la interna. El

rango del detector está entre 5 KeV y 10 MeV, con resistencia a las radiaciones de neutrones y de partículas cargadas diez veces superior.

La eficiencia es del 20% para el ^{60}Co . La resolución es de 1 KeV para 122 KeV y de 2 KeV para 1332 KeV. La relación Pico/Compton es 50:1.

A continuación, en la figura 14, incluimos el esquema de un detector reverse que es el que se ha utilizado para las medidas mediante espectrometría gamma.

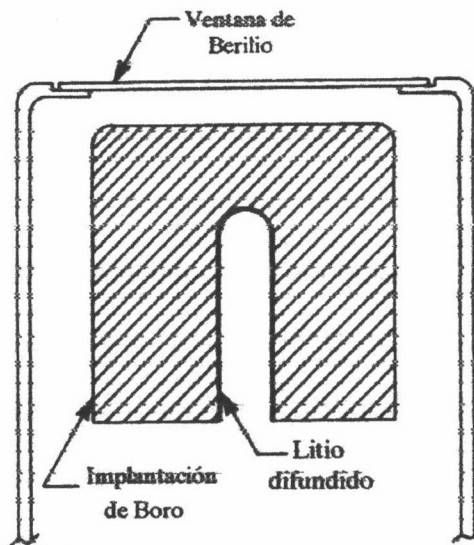


Figura 14. Detector de Germanio tipo reverse (REGe)

Criostato vertical con capacidad para 30 litros de Nitrógeno líquido, que proporciona la baja temperatura (90 K) necesaria para el funcionamiento del detector. Además incluye una junta de silicona, para amortiguar ruidos en el detector.

Este detector va conectado a un preamplificador, marca CANBERRA, modelo 2002 CSL, con un ruido inferior a 600 eV para una capacidad de entrada de 0 pf. La capacidad de contaje de este preamplificador es superior a 200000 cuentas por segundo para el ^{60}Co (para el pico de 1332 KeV). Permite tensiones de polarización entre ± 5000 voltios e incluye un filtro con una constante de tiempo nominal de 6 segundos.

En la figura 15 se muestra este equipo de medida.

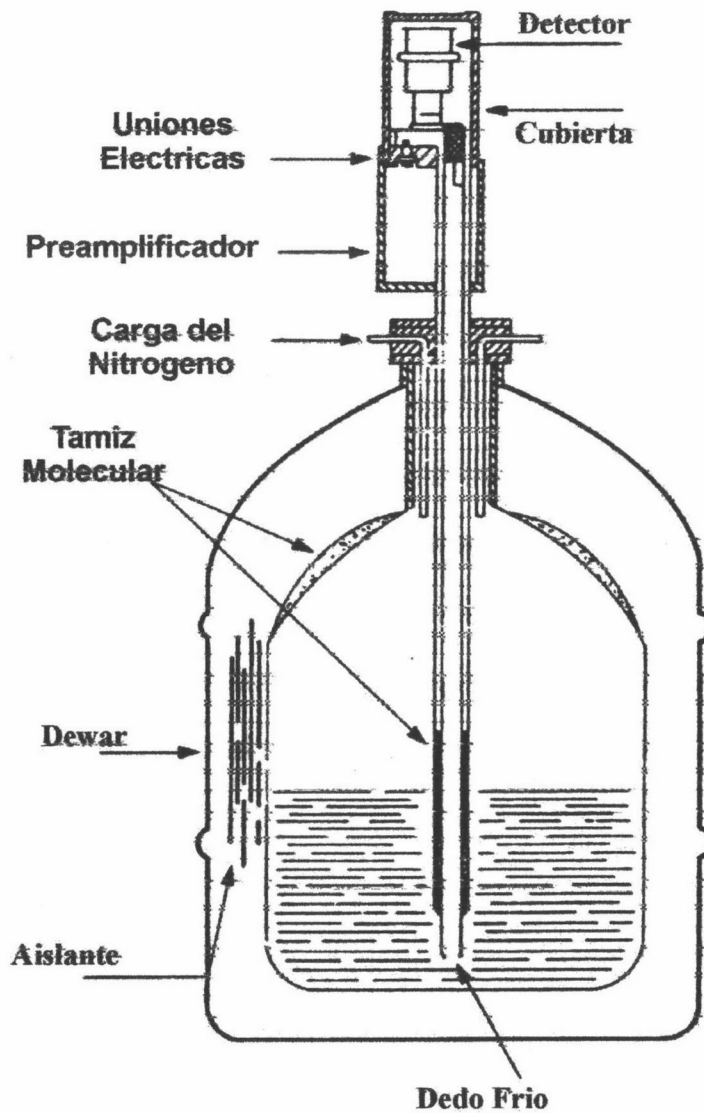


Figura 15. Configuración del REGe.

Amplificador lineal de espectrometría, marca CANBERRA, modelo 2020. Posee entrada de señal positiva y negativa. Tiempo de subida menor que la constante de tiempo (entre 250 nanosegundos y 6 microsegundos). Ganancia gruesa seleccionable de 6 posiciones que van desde 10 hasta 3000. Ganancia fina variable entre un factor de 0,3 hasta 1,3.

Fuente de alimentación de alta tensión, marca CANBERRA, modelo 3106D. Tensión de salida regulada de 0 a ± 6000 voltios, con una resolución de 10 voltios. La corriente de salida es de 100 microamperios. Posee polaridad positiva y negativa. Está protegida contra arcos y sobrecargas. Incluye medidor de voltaje 50 ppm/ $^{\circ}$ C de coeficiente de temperatura.

Convertidor analógico/digital (ADC), marca CANBERRA, modelo 8701 de 100 MHz y discriminador de nivel inferior y superior. Resolución de 8K canales. Offset digital en incrementos de 128 canales. Presentación frontal del tiempo muerto. Interfase de acceso directo a memoria. Estabilidad mejor que $\pm 0,009\%$ a fondo de escala/ $^{\circ}$ C. Entrada con rechazador de apilamiento de pulsos. Acepta pulsos positivos unipolares y bipolares.

Analizador Multicanal (MCA), marca CANBERRA, System 100 modelo 4610, de las siguientes características:

- Memoria de 16384 canales.
- Admite un máximo de $2^{32} - 1$ cuentas por canal.
- Partición de memoria hasta en 16 zonas.
- Control para un posible cambiador de muestras.
- Microprocesador de 16 bit.
- Interfase para conexión de ADC externo, módulo multiescala.

- Preselección por tiempos, cuentas, integral. Selección entre 256 y 16K canales, regiones de interés, zonas de expansión, solapamiento de espectros.
- Posibilidad de calibración en energías, cálculo del área, integral, anchura de picos, suavizado, etc...
- El control del analizador se realiza mediante un ordenador PC trabajando en entorno Windows.

Programa de análisis de espectros gamma, marca CANBERRA, modelo SPECTRAN-AT. Permite la calibración del sistema para múltiples geometrías. Calcula la mínima actividad detectable y el porcentaje de la máxima concentración permisible para cada radionúclido identificado, así como busca automáticamente los picos, calcula el centroide, calcula las áreas, resuelve multipletes, identifica isótopos, calcula actividades y el error asociado a las mismas y resta la contribución del fondo en las medidas realizadas.

Blindaje para el detector de Germanio constituido por ladrillos de plomo y láminas de hierro diseñado por nosotros y que consta de las siguientes partes (figura 16):

- Una mesa reforzada de hierro de 75 cm de altura, 75 cm de anchura y otros 75 cm de fondo. Consta de cuatro patas cuadradas de tubo de hierro de 4 x 4 cm, en su base cada pata tiene soldadas unas chapas cuadradas de 6 mm de espesor y de 7,5 cm de lado para aumentar la superficie de apoyo en su contacto con el suelo. Tres de los cuatro laterales del soporte de la mesa van reforzados con tubo de hierro del mismo tipo que el de las patas, el frontal de la mesa lleva unos refuerzos diferentes consistentes en unas escuadras de hierro soldadas de 104 x 225 mm, este refuerzo es distinto al de los demás laterales para facilitar la colocación del recipiente Dewar sobre el que va fijado el detector.

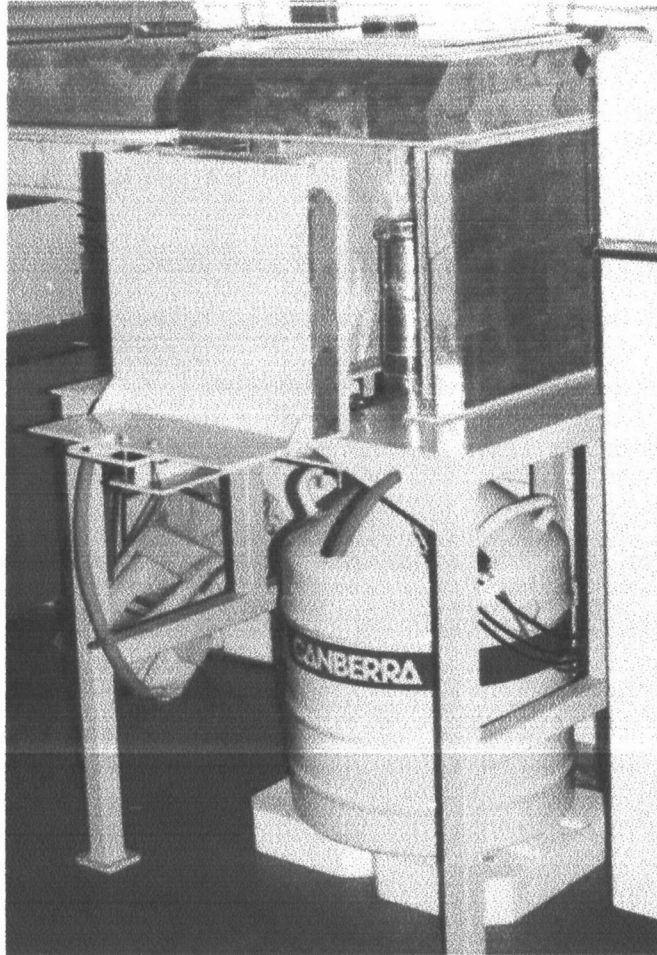


Figura 16. Blindaje del detector de Ge.

El tablero de la mesa es de chapa de hierro de 8 mm de grueso de forma cuadrada y provisto de una ranura central de 13 cm de anchura que termina con un arco de dicho diámetro con centro en el mismo centro del tablero. La finalidad de dicha ranura es la de permitir el desmontaje del detector en caso de avería u otra razón.

- Sobre la mesa que se ha descrito hemos construido un castillete de ladrillos de plomo con un espesor de 10,5 cm en sus tres laterales y en el techo, las dimensiones exteriores del castillete son 47 cm de ancho, 47 cm de fondo y 48,5 cm de altura. Las dimensiones interiores son 23 cm de ancho, 24,5 cm de fondo y

37,3 cm de altura. El citado castillete va recubierto interiormente de chapas de hierro de 7 mm de espesor para reducir el pico de rayos X del plomo. El peso del plomo de los laterales y del techo totaliza 793 Kg y las chapas de hierro situadas en dichos lugares, unos 40 Kg.

El cierre del blindaje, se hace mediante una puerta de hierro y plomo, diseñada por nosotros, que se desliza sobre cojinetes, tirándose de ella mediante un asa de la que va provista. La puerta consiste en un alojamiento constituido por dos chapas verticales de 6 mm de espesor, 36 cm de ancho, 36 cm de alto y 6,7 cm de separación interna de las chapas. En su interior van ladrillos de plomo de un espesor de 5,2 cm, con un peso de 77 Kg, y en la parte que da al detector dos chapas de hierro de 7 mm de espesor cada una. El peso aproximado del hierro de la puerta es de unos 30 Kg. Por lo tanto el peso total del blindaje es de unos 870 Kg de plomo y unos 100 Kg de hierro. Considerando también el peso del tablero de hierro sobre el que va construido (unos 30 Kg), tenemos que el peso total de todo el blindaje es de unos 1000 Kg.

Todo el interior del blindaje va recubierto de una delgada lámina de plástico adhesivo cuya finalidad es la de facilitar la descontaminación interna de dicho blindaje en el caso de que accidentalmente tuviera lugar algún tipo de contaminación.

III.4.2. ESPECTRÓMETRO DE CENTELLEO LÍQUIDO.

Este equipo de medida es marca Packard, modelo Tri-carb 460C (figura 17). Sus características son las siguientes:

- Capacidad para 460 muestras dispuestas en bandejas de 10 viales.
- Cambiador de muestras con movimiento bidireccional y con paso de las posiciones vacías.
- Compatible con viales standards (22 ml) y con picoviales (7 ml) utilizando adaptadores.
- Dispositivo para prevenir deterioros mecánicos debidos a carga defectuosa de viales.
- Los impulsos coincidentes sumados que vienen del sistema detector se acumulan en un circuito analizador de espectros y se almacenan. La amplificación y el almacenamiento lineal proveen el máximo de estabilidad.
- El espectrómetro va provisto de un dispositivo que permite almacenar datos para el análisis de hasta tres isótopos simultáneos, ya sea prefijados en el equipo ^3H , ^{14}C , ^{32}P , ^{125}I , $^3\text{H}/^{14}\text{C}$, $^3\text{H}/^{32}\text{P}$, o bien manualmente por el usuario utilizando la energía del isótopo como guía.
- Control automático de la eficiencia que asegura que los datos obtenidos por el espectrómetro están corregidos para diferentes grados de extinción, manteniendo de esta manera el criterio de medida seleccionado por el usuario.
- La eficiencia en la medida de la muestra se determina mediante el propio equipo de centelleo líquido que calcula la relación de cuentas de la muestra (SCR), el índice espectral de la muestra (SIS) y el índice espectral del patrón externo (SIE).
- Control del tiempo vivo para impedir que se pierdan impulsos en el caso de una muestra muy activa. Máximo valor: 6×10^6 cuentas aproximadamente.
- Finalización de la medida por tiempo o por el preestablecimiento del error relativo de la misma. Esta combinación provee los máximos resultados reduciendo el tiempo de medida en muestras muy activas.
- Patrón externo de ^{226}Ra .

MATERIALES UTILIZADOS

- El sistema va controlado por un microprocesador con capacidad para definir hasta 15 programas de medida diferentes.
- Cálculo de medias en cuentas repetidas.
- Sustracción automática de fondo ya sea fijando manualmente los valores de cpm para cada región de contaje, o bien, automáticamente, por el sistema durante los 10 primeros minutos previos al contaje de las muestras.
- Control de Priostato para medir una muestra con prioridad sin afectar al contaje automático.

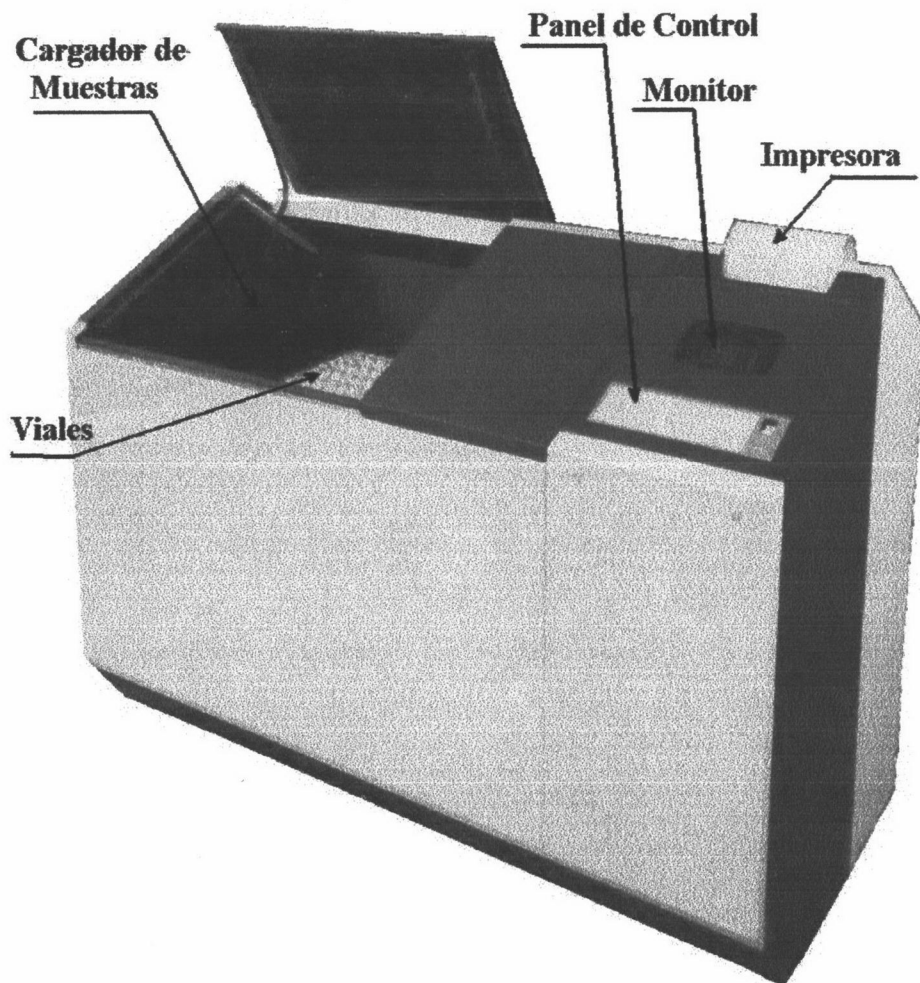


Figura 17. Espectrómetro de centelleo líquido Packard, modelo TRI-CARB 4640.

III.4.3. pHMETRO PORTÁTIL.

El pH-metro portátil utilizado es el modelo 507 de la marca CRISON.

Está preparado para medir no solo el pH, sino también el potencial redox (mV) y la temperatura. Se puede compensar manual o automáticamente la lectura de pH en función de la temperatura. También reconoce automáticamente los tampones de calibración de pH 7.02, 4.00 y 9.26 (20 °C). Posee una resolución de 0.01 unidades de pH.

La carcasa del instrumento es hermética, de plástico rígido, con teclado de membrana y pantalla de cristal líquido.

III.4.4. CONDUCTIVÍMETRO PORTÁTIL.

El conductivímetro utilizado es el modelo 524 de la marca CRISON.

Está provisto de una célula de conductividad, con sensor termométrico incorporado para la Compensación Automática de la Temperatura, ofrece el valor de la conductividad de la disoluciones medidas, referido a 20 °C.

III.5. OTRAS TÉCNICAS UTILIZADAS

III.5.1. ANÁLISIS GRANULOMÉTRICO DE LOS SUELOS.

Para la caracterización granulométrica de los suelos se han empleado la serie de tamices ASTM con mallas cuya luz oscila entre 38 y 0.075 mm.



CAPÍTULO IV: MÉTODOS EXPERIMENTALES

IV.1. TOMA DE MUESTRAS.

IV.1.1. MUESTRAS DE AIRE.

La toma de muestra de partículas atmosféricas se ha realizado en Granada ciudad, en la Facultad de Ciencias cuyos datos de situación geográfica son:

Hoja Topográfica 1:50.000 nº1009(19-41): Granada.

Coordenadas geográficas 37°10'50" L.N.-0°4'40" L.E.

Coordenadas Lambert (287-288 L.E.) (606-607 L.N.)

Coordenadas U.T.M. 41.15.200 LN-44.60.00 LE

Altitud 670 m S.N.M.

Para la obtención de las muestras de aire hemos utilizado el dispositivo descrito en el apartado III.1.1. haciendo pasar el aire a través de los filtros y cartuchos, mediante una bomba con un caudal constante de 30 l/min durante 7 días. Transcurrido este tiempo, se cambia tanto el filtro como el cartucho de carbón activo. Los filtros se pesan antes y después de la toma de muestra para determinar el depósito acumulado sobre los mismos que constituye la muestra correspondiente (CSN, 1988a).

El cartucho de carbón activo se utiliza para adsorber los gases radiactivos (^{131}I) que pueda haber en la atmósfera; durante la campaña de muestreo que se presenta en esta Memoria (1993-1997) no se ha detectado dicho isótopo en ninguna de las muestras medidas.

IV.1.2. MUESTRAS DE AGUA DE LLUVIA.

La toma de muestras de agua de lluvia también se ha realizado en la Facultad de Ciencias en Granada ciudad.

Para la captación de agua de lluvia se utiliza el dispositivo descrito en el apartado III.1.2., colectándose toda el agua llovida durante el mes (CSN, 1988a). Para evitar la pérdida de muestra disponemos de dos recipientes de plástico de 30 litros de capacidad, conectados entre sí, en los cuales se colecta el agua. Estos recipientes, para reducir el riesgo de desbordamiento, se procura dejarlos vacíos al final de la jornada y al comienzo de los fines de semana, para lo cual se vacía su contenido en otros recipientes donde se almacena. El último día del mes se procede a la retirada del recipiente de almacenamiento que se sustituye por otro nuevo no utilizado con anterioridad. La muestra colectada se acidifica con HNO_3 concentrado para evitar su descomposición, ya que no se analizará hasta el final del trimestre.

IV.1.3. MUESTRAS DE AGUA SUBTERRÁNEA.

Para la toma de muestra de agua subterránea hemos utilizado los recipientes de polietileno y de vidrio descritos en el apartado III.1.3. con objeto de estudiar si se produce pérdida de ^{222}Rn por difusión en el plástico.

La toma de muestra se realiza llenando completamente los recipientes en los cuales se va a transportar el agua hasta el laboratorio. Debe llenarse completamente para evitar que quede espacio de aire libre puesto que se perdería Rn al quitar el tapón para preparar los viales de medida, debido a la tendencia que tiene el Rn a pasar a la fase gaseosa que es de 4:1 respecto a la fase acuosa (Darrall *et al.* 1973; Prichard *et al.* 1977). Horiuchi K. *et al.* (1981) realizó un estudio para comprobar dicha tendencia, cuyos resultados se muestran en la tabla X, de la cual habría que destacar las pérdidas de casi un 30 % detectadas cuando la temperatura del agua era de 20 °C.

Tabla X. Distribución de ^{222}Rn en agua y aire (**Horiuchi K. et al. 1981**).

Temperatura del agua en la extracción (°C)	10	15	20	25
Coefficiente de distribución aire/agua	0.353	0.306	0.263	0.235
agua (1000 ml)	77.9	75.4	72.5	70.2
aire (100 ml)	22.1	24.6	27.5	29.8

En la tabla siguiente se presentan los lugares en los cuales se han tomado muestras de agua subterránea.

Tabla XI. Ubicación de los puntos de muestreo de agua subterránea.

Muestra	Población	Muestra	Población	Muestra	Población
1	La Malahá (Gr)	10	Padul (Gr)	18	La Malahá (Gr)
2	La Malahá (Gr)	11	Padul (Gr)	19	La Malahá (Gr)
3	Jayena (Gr)	12	Vélez Benaudalla (Gr)	20	Andújar (J)
4	Arenas del Rey (Gr)	13	Colomera (Gr)	21	Andújar (J)
5	Játar (Gr)	14	Colomera (Gr)	22	Andújar (J)
7	Vélez Benaudalla (Gr)	15	Colomera (Gr)	23	Andújar (J)
8	Dúrcal (Gr)	16	Lanjarón (Gr)	24	Andújar (J)
9	Dúrcal (Gr)	17	Lanjarón (Gr)	25	Andújar (J)

IV.1.4. MUESTRAS DE SUELO.

Para la obtención de este tipo de muestras se utiliza el dispositivo descrito en el apartado III.1.4.

Dado que se han tomado muestras en diversos puntos y a lo largo de un período de varios años, se ha podido estudiar tanto la evolución temporal como la distribución espacial de la radiactividad.

La toma de las muestras para determinar la evolución temporal, se ha realizado semestral o anualmente en el término municipal de Quéntar, próximo al kilómetro 18,8 del camino forestal Quéntar-I.a Peza. Las coordenadas geográficas del lugar son 37°14'7"38 N, 3°23'51"8 W. La altitud del lugar es 1300 metros sobre el nivel del mar. Se trata de una zona despejada, poco transitada (se eligió una zona de la provincia de Granada en la que los núcleos de población estuviesen bastante alejados), sin árboles muy cerca y sin escorrentías por causa de lluvia (se seleccionó una zona en la que las curvas de nivel estuviesen bastante alejadas) (CSN, 1988a).

Para el estudio de distribución espacial se ha realizado toma de muestra de los suelos en los que se encuentran los manantiales de aguas subterráneas, puesto que uno de los objetivos que se persiguen es comparar la actividad de los suelos con la actividad de las surgencias. La situación de los puntos estudiados se presentó en el apartado anterior, en la tabla XI.

IV.2. PUESTA A PUNTO DE LOS EQUIPOS DE MEDIDA.

IV.2.1. pHMETRO PORTÁTIL.

Este equipo se calibra antes de cada salida al campo con tampones de pH 7.02 y 4.00 de la marca Crison.

IV.2.2. CONDUCTIVÍMETRO PORTÁTIL.

Este equipo se calibra con una disolución patrón de KCl 0.1 M, antes de cada salida al campo.

IV.2.3. ESPECTRÓMETRO GAMMA MULTICANAL

En primer lugar se diseñó el blindaje descrito en el apartado III.4.1. La función del blindaje es la de reducir la radiación de fondo ya que ésta interfiere en las medidas de las muestras. Cuanto menor sea la radiación de fondo menor será el *Límite Inferior de Detección* (LID) y por lo tanto podremos detectar actividades menores. Una vez construido el blindaje se llenó el recipiente Dewar con 30 litros de Nitrógeno líquido que suministrarían la baja temperatura necesaria para el funcionamiento del detector y se introdujo en su interior el dedo frío sobre el que se sitúa el detector.

A continuación se procedió al encendido del espectrómetro cuidando de subir el voltaje muy lentamente ya que este detector se despolariza cuando se producen aumentos bruscos de voltaje. El voltaje de trabajo es 3950 V. Para evitar que el equipo se estropee cuando se producen cortes en el suministro eléctrico se ha conectado dicho equipo a un disyuntor de rearme manual. Este disyuntor evita que llegue la corriente al equipo después de un corte de luz evitando, por lo tanto, que el voltaje aumente bruscamente. También se ha conectado a un sistema de alimentación ininterrumpida (S.A.I.) que proporciona electricidad durante unas tres horas, en caso de producirse un corte de electricidad (lo que suele ser frecuente). El SAI ha evitado pérdidas de medidas en bastantes casos en los que ha habido cortes de electricidad inferiores a tres horas en la Facultad de Ciencias.

Se realizó un ajuste de la ganancia del equipo. Para ello se obtuvo el espectro del patrón del calibrado en energía y se fue modificando el valor de la ganancia hasta que los fotopicos aparecieron en los canales que tenían un valor de aproximadamente el doble de la energía de los mismos ya que se trabaja con 4096 canales para unas energías de unos 2000 KeV (System 100, 1990).

A continuación se procedió al calibrado en energías del equipo. Este paso se describirá más adelante en el apartado IV.4.1. La calibración en energías permite establecer una relación entre la escala de canales del analizador multicanal y la energía asociada a los mismos, lo que posibilita el análisis cualitativo de las muestras. Para el análisis cuantitativo también hemos realizado un calibrado en eficiencias así como una medida del fondo para cada geometría utilizada. Estos pasos se describirán en los apartados IV.4.1.2 y IV.6. El calibrado en eficiencias permite relacionar la actividad medida por el detector con la actividad real de la muestra. Por último, la medida de la radiación de fondo nos permite conocer la actividad ambiental debida a la presencia de radioisótopos en el ambiente.

IV.2.4. ESPECTRÓMETRO DE CENTELLEO LÍQUIDO.

Para realizar medidas en un espectrómetro de centelleo líquido tenemos que seleccionar la ventana de trabajo. Para ello hay que determinar la posición óptima de los discriminadores inferior y superior. Esto se realiza obteniendo el espectro de un patrón del isótopo que se desea medir (en nuestro caso $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ ó ^{222}Rn), y se calcula el factor de mérito (M_F) modificando las posiciones de los discriminadores. El factor de mérito es un criterio de calidad que se expresa mediante la relación,

$$M_F = E^2/B$$

donde E es la eficiencia y B es el fondo. Cuando M_f es máximo, se está midiendo con la máxima eficiencia para un mínimo fondo. El procedimiento seguido fue el siguiente: primero se dejó fija al final de la banda la posición del discriminador superior y se fue modificando la posición del discriminador inferior. Se seleccionó aquella posición que condujo a un factor de mérito máximo. Se situó el discriminador inferior en dicha posición y se fue modificando la posición del discriminador superior.

En la figura 18 se muestra un espectro beta en el cual aparecen las posiciones de los discriminadores así como un espectro de la radiación de fondo.

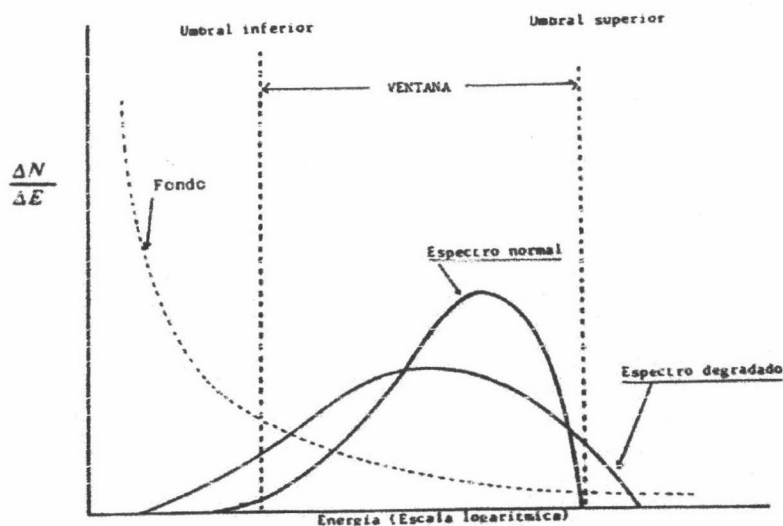


Figura 18. Espectro beta obtenido con un detector de centelleo líquido (Gaeta Caballero R., 1991).

Las posiciones óptimas encontradas para las medidas de ^{90}Sr en nuestro equipo fueron 15 y 400 para el discriminador inferior y superior respectivamente.

En las medidas del contenido en ^{222}Rn de las aguas subterráneas mediante centelleo líquido se ha trabajado usando tanto una ventana de 0-2000 KeV como

utilizando otra ventana que hemos denominado del Radón. Para seleccionar esta última hemos obtenido el espectro de un agua que presentaba una gran actividad del isótopo a medir, (en nuestro caso ^{222}Rn en equilibrio con sus hijos) y se ha calculado el factor de mérito modificando la posición de los discriminadores en la forma ya descrita. Este agua procede de un pozo ubicado en una zona granítica y por lo tanto el agua estaba muy enriquecida en ^{222}Rn . La posición óptima encontrada para nuestro equipo fue de 15 y 300 para el discriminador inferior y superior respectivamente. El trabajar en esta ventana presenta la ventaja de que el fondo del detector es menor que el obtenido en la ventana 0-2000 y por lo tanto se consigue reducir el LID, es decir la mínima cantidad necesaria para poder ser detectada, lo cual es conveniente para muestras de poca actividad.

IV.3. PREPARACIÓN DE PATRONES DE REFERENCIA.

Para determinar la actividad de una muestra ha de conocerse, entre otros factores, la eficiencia del detector para cada una de las diferentes geometrías empleadas en las medidas. Para ello hay que preparar unos patrones adecuados, es decir unas muestras cuya actividad se conozca previamente y que posean la misma geometría de las muestras a medir.

IV.3.1. PATRONES PARA ESPECTROMETRÍA GAMMA.

Para las medidas con espectrometría gamma hemos preparado dos tipos de patrones: unos para el calibrado en energías del espectrómetro (análisis cualitativo), y otros para el calibrado de las eficiencias de las diferentes geometrías (análisis cuantitativo).

IV.3.1.1. Patrón para el calibrado en energías.

Para el calibrado en energías se preparó una plancheta de acero inoxidable de 47 mm de diámetro a la que se le añadieron 0,11 mL de una disolución de ^{137}Cs , 2,2 mL de una disolución de ^{22}Na y 4,6 mL de una disolución de ^{60}Co . Los diferentes volúmenes de disolución añadida se calcularon para que la altura de los diferentes picos fuese parecida. El líquido de esta plancheta se evaporó mediante rayos infrarrojos para la obtención de los correspondientes residuos secos. Los picos producidos por estos radionúclidos se muestran en la tabla XII, cubriendo un rango de 500-2000 keV.

Para cubrir también la zona de bajas energías se preparó otra plancheta añadiendo 1 ml de una disolución patrón de ^{241}Am , ya que este radioisótopo produce una emisión gamma a 59,5 KeV.

Tabla XII. Picos producidos por el patrón utilizado para el calibrado en energías.

ENERGÍA (KeV)	ISÓTOPO
511,00	Na-22
661,64	Cs-137 ($^{137\text{m}}\text{Ba}$)
1173,21	Co-60
1274,51	Na-22
1332,46	Co-60
1785,51	Na-22

IV.3.1.2. Patrones para el calibrado en eficiencias.

En la preparación de los patrones para el calibrado en eficiencias se han utilizado los patrones descritos en los apartados III.3.2. y III.3.3. habiéndose preparado un patrón para cada una de las geometrías empleadas.

El patrón de 13 filtros para partículas de aire, se ha preparado añadiendo 2 ml (2,0502 g) del cóctel gamma y 1 ml (1,0832 g) de la disolución de ^{241}Am , ambos patrones fueron descritos en el apartado III.3., a 13 filtros del mismo tipo que los utilizados para la toma de muestra. Se ha evaporado bajo lámparas de rayos infrarrojos hasta peso constante. La actividad añadida correspondiente a cada energía se recoge en la tabla XIII. Este patrón se utiliza para el cálculo de la eficiencia en las medidas trimestrales.

Como también se han realizado análisis mensuales y semanales de los filtros se han preparado patrones con cuatro, cinco y un filtro respectivamente, empleándose el patrón de cuatro o cinco filtros para las muestras mensuales y el patrón de un filtro para las muestras semanales.

Tabla XIII. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis trimestral de los filtros de partículas de polvo.

Radionúclido	Energía KeV	Intensidad	dps	Período años
Am-241	59,5	0,359	95,2	432,20
Ba-133	81,0	0,330	318,4	10,50
Eu-152	121,8	0,284	268,4	13,60
Eu-152	244,7	0,075	64,5	13,60
Ba-133	276,4	0,069	62,2	10,50
Ba-133	302,8	0,178	158,5	10,50
Eu-152	344,3	0,265	246,1	13,60
Ba-133	356,0	0,605	540,6	10,50
Cs-137	661,6	0,900	926,3	32,20
Eu-152	778,9	0,127	120,6	13,60
Eu-152	867,3	0,042	36,8	13,60
Eu-152	964,0	0,144	142,1	13,60
Eu-152	1112,0	0,133	135,1	13,60
Co-60	1173,2	1,000	245,3	5,27
Co-60	1332,5	1,000	245,3	5,27
Eu-152	1407,9	0,207	212,9	13,60

El patrón de 4 filtros para partículas de aire, se ha preparado añadiendo 2 ml (2,0429 g) del cóctel gamma y 1 ml (1,0717 g) de la disolución de ^{241}Am a 4 filtros sin usar de los utilizados para la toma de muestra. Se ha evaporado bajo lámparas de rayos infrarrojos hasta peso constante. La actividad añadida correspondiente a cada energía se recoge en la tabla XIV.

Tabla XIV. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis mensual (4 semanas) de los filtros de partículas de polvo.

Radionúclido	Energía KeV	Intensidad	dps	Período años
Am-241	59,5	0,359	94,1	432,20
Ba-133	81,0	0,330	317,3	10,50
Eu-152	121,8	0,284	267,4	13,60
Eu-152	244,7	0,075	64,3	13,60
Ba-133	276,4	0,069	62,0	10,50
Ba-133	302,8	0,178	157,9	10,50
Eu-152	344,3	0,265	245,3	13,60
Ba-133	356,0	0,605	538,7	10,50
Cs-137	661,6	0,900	923,0	32,20
Eu-152	778,9	0,127	120,2	13,60
Eu-152	867,3	0,042	36,6	13,60
Eu-152	964,0	0,144	141,6	13,60
Eu-152	1112,0	0,133	134,7	13,60
Co-60	1173,2	1,000	244,4	5,27
Co-60	1332,5	1,000	244,4	5,27
Eu-152	1407,9	0,207	212,2	13,60

El patrón de 5 filtros para partículas de aire, se ha preparado añadiendo 2 ml (2,1337 g) del cóctel gamma y 1 ml (1,0701 g) de la disolución de ^{241}Am a 5 filtros. Se ha evaporado bajo lámparas de rayos infrarrojos hasta peso constante. La actividad añadida correspondiente a cada energía se recoge en la tabla XV.

Tabla XV. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis mensual (5 semanas) de los filtros de partículas de polvo.

Radionúclido	Energía KeV	Intensidad	dps	Período años
Am-241	59,5	0,359	89,2	432,20
Ba-133	81,0	0,330	324,0	10,50
Eu-152	121,8	0,284	273,1	13,60
Eu-152	244,7	0,075	65,7	13,60
Ba-133	276,4	0,069	63,3	10,50
Ba-133	302,8	0,178	161,3	10,50
Eu-152	344,3	0,265	250,5	13,60
Ba-133	356,0	0,605	550,1	10,50
Cs-137	661,6	0,900	942,6	32,20
Eu-152	778,9	0,127	122,8	13,60
Eu-152	867,3	0,042	37,4	13,60
Eu-152	964,0	0,144	144,6	13,60
Eu-152	1085,8	0,100	125,1	13,60
Eu-152	1112,0	0,133	137,5	13,60
Co-60	1173,2	1,000	249,6	5,27
Co-60	1332,5	1,000	249,6	5,27
Eu-152	1407,9	0,207	216,7	13,60

El patrón de 1 filtro para partículas de aire, se ha preparado añadiendo 2 ml (2,5801 g) del cóctel gamma y 1 ml (1,0707 g) de la disolución de ^{241}Am a 1 filtro sin usar de los utilizados para la toma de muestra. Se ha evaporado bajo lámparas de rayos infrarrojos hasta peso constante. La actividad añadida correspondiente a cada energía se recoge en la tabla XVI.

Tabla XVI. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis semanal de los filtros de partículas de polvo.

Radionúclido	Energía KeV	Intensidad	dps	Período años
Am-241	59,5	0,359	94,1	432,20
Ba-133	81,0	0,330	401,2	10,50
Eu-152	121,8	0,284	338,1	13,60
Eu-152	244,7	0,075	81,3	13,60
Ba-133	276,4	0,069	78,4	10,50
Ba-133	302,8	0,178	199,7	10,50
Eu-152	344,3	0,265	310,1	13,60
Ba-133	356,0	0,605	681,1	10,50
Cs-137	661,6	0,900	1166,9	32,20
Eu-152	778,9	0,127	152,0	13,60
Eu-152	867,3	0,042	46,3	13,60
Eu-152	964,0	0,144	179,0	13,60
Eu-152	1112,0	0,133	170,3	13,60
Co-60	1173,2	1,000	309,0	5,27
Co-60	1332,5	1,000	309,0	5,27
Eu-152	1407,9	0,207	268,2	13,60

El patrón de la geometría tipo Marinelli de un litro se ha preparado añadiendo 5 ml (5,28 g) del patrón gamma y 3 ml (3,19 g) de la disolución patrón de ^{214}Am a un Marinelli sobre el cual se añadió agua bidestilada hasta completar un volumen de un litro. Se agitó bien para homogeneizar el patrón. La actividad añadida correspondiente a cada energía se recoge en la tabla XVII. Esta geometría la hemos utilizado para la medida del Rn-222 contenido en las muestras de agua subterránea.

Tabla XVII. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis de las muestras medidas en recipientes tipo Marinelli de un litro.

Radionúclido	Energía KeV	Intensidad	dps	Período años
Am-241	59,5	0,359	265,5	432,20
Ba-133	81,0	0,330	801,7	10,50
Eu-152	121,8	0,284	675,7	13,60
Eu-152	244,7	0,075	162,5	13,60
Ba-133	276,4	0,069	156,6	10,50
Ba-133	302,8	0,178	399,0	10,50
Eu-152	344,3	0,265	619,6	13,60
Ba-133	356,0	0,605	1361,0	10,50
Ba-133	383,8	0,087	212,2	10,50
Cs-137	661,6	0,900	2332,0	32,20
Eu-152	778,9	0,127	303,7	13,60
Eu-152	867,3	0,042	92,6	13,60
Eu-152	964,0	0,144	357,7	13,60
Eu-152	1085,8	0,100	309,5	13,60
Eu-152	1112,0	0,133	340,3	13,60
Co-60	1173,2	1,000	617,5	5,27
Co-60	1332,5	1,000	617,5	5,27
Eu-152	1407,9	0,207	536,0	13,60

El patrón de agua evaporada se ha preparado añadiendo 2 ml (2,10 g) del patrón gamma y 1 ml (1,04 g) de la disolución patrón de ^{214}Am a una bandeja que contiene una lámina de plástico resistente al calor y evaporando con rayos infrarrojos. Se ha plegado la lámina y se ha introducido en una caja Petri de 47 mm de diámetro. La actividad añadida correspondiente a cada energía se recoge en la tabla XVIII. Esta geometría se ha utilizado para la

medida de las muestras de agua de lluvia por presentar menor LID que la geometría Marinelli 1 litro.

Tabla XVIII. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis de las muestras de agua evaporada sobre lámina de plástico.

Radionúclido	Energía KeV	Intensidad	dps	Período años
Am-241	59,5	0,359	86,8	432,20
Ba-133	81,0	0,330	319,2	10,50
Eu-152	121,8	0,284	269,0	13,60
Eu-152	244,7	0,075	64,7	13,60
Ba-133	276,4	0,069	62,3	10,50
Ba-133	302,8	0,178	158,8	10,50
Eu-152	344,3	0,265	246,7	13,60
Ba-133	356,0	0,605	541,8	10,50
Cs-137	661,6	0,900	928,4	32,20
Eu-152	778,9	0,127	120,9	13,60
Eu-152	867,3	0,042	36,9	13,60
Eu-152	964,0	0,144	142,4	13,60
Eu-152	1112,0	0,133	135,5	13,60
Co-60	1173,2	1,000	245,9	5,27
Co-60	1332,5	1,000	45,9	5,27
Eu-152	1407,9	0,207	213,4	13,60

IV.3.2. PATRONES PARA CENTELLEO LÍQUIDO

Esta técnica está basada en la transformación de la energía de la radiación beta en energía luminosa mediante sustancias centelleadoras en estado líquido. Este proceso puede ser distorsionado o interrumpido por algunos fenómenos que se

agrupan bajo la denominación común de extinción o “*Quenching*”. El efecto de éste es una variación en la forma del espectro, siendo esta característica la que se utiliza para su cuantificación. En las muestras que se presentan en esta Memoria hemos utilizado para determinar el “*Quenching*” el denominado índice espectral del estándar externo (SIE), para lo cual se irradia con una fuente de ^{226}Ra la muestra a medir durante 15 segundos antes de comenzar la medida de la muestra, obteniéndose el correspondiente espectro, y a continuación, el valor del SIE.

IV.3.2.1. Patrones de ^{90}Sr e ^{90}Y .

Se han preparado patrones de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ en equilibrio.

Con objeto de conocer como varia la eficiencia en función del SIE, se han preparado patrones de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ en equilibrio añadiendo 100 μl de disolución patrón de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ de actividad 2,5 Bq/mg a seis viales, a los cuales se les han añadido cantidades crecientes de CCl_4 como agente extintor, se ha completado hasta un volumen de 14 ml con agua destilada, se han añadido 6 ml de Instagel y se han agitado para homogeneizarlos bien. Las características de estos patrones se presentan en la tabla XIX.

Tabla XIX. Características de los patrones de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$

Volumen de CCl_4 (μl)	Peso de patrón añadido (mg)	Actividad añadida (dpm)
0	88,6	13290
10	97,0	14550
20	98,1	14715
50	97,3	14595
100	96,6	14490
200	98,7	14805

IV.4.MEDIDA DE LOS PATRONES.

IV.4.1. PATRONES PARA ESPECTROMETRÍA GAMMA.

IV.4.1.1. Calibrado en energías

Para la realización del calibrado en energías hemos utilizado las dos planchetas descritas en el apartado IV.3.1. y otras tres planchetas más de ^{22}Na para favorecer la formación del pico suma del ^{22}Na que aparece a 1785,52 KeV. Con el fin de lograr una altura parecida entre los diferentes picos del espectro, estas planchetas se colocan del modo siguiente: sobre la tapadera de una caja Petri se centra la plancheta de ^{22}Na de mayor actividad; encima de ésta se coloca la plancheta de ^{241}Am , sobre ésta se coloca una duquesa vacía sobre la cual se coloca la plancheta que contiene ^{60}Co , ^{137}Cs y ^{22}Na . Por último, se colocan las otras dos planchetas de ^{22}Na . El tiempo empleado para la medida del patrón ha sido de 240 minutos. Una vez medido el patrón se archiva su espectro en la memoria del disco duro del ordenador para un tratamiento posterior.

Para el tratamiento de los datos se empleó un paquete de programas denominado SPECTRAN-AT V.4.0, el cual está formado por varios programas llamados CALIB, ANALYZ, PKEDIT, ANEDIT.

El programa CALIB permite la realización del calibrado en energías y del calibrado en eficiencias (Spectran-AT V.4.0, 1987).

Con el conjunto de los parámetros correspondientes a los picos del patrón se calibra en energías, obteniéndose con dicho programa los coeficientes de los polinomios que relacionan:

- Energía con el canal donde aparece el máximo del fotopico.
- Anchura a la mitad de la altura del fotopico (FWHM) con la energía.
- Factor de asimetría con la energía.

La ecuación que relaciona la energía (E) con el canal (C) es de la forma:

$$E = A_1 C^2 + A_2 C + A_3$$

por lo tanto el patrón empleado en el calibrado en energías debe poseer un mínimo de tres picos para poder calcular dichos coeficientes. Cada cierto período de tiempo hay que repetir el calibrado en energías ya que se produce un cierto desplazamiento de la posición de los fotopicos.

Los estadísticos de los coeficientes obtenidos en las diversas calibraciones se presentan en el capítulo siguiente (apartado V.1.1.1)

Una vez obtenidos los valores de los coeficientes de la ecuación que relaciona la energía con el canal se introducen manualmente al programa S100, que es con el que se obtienen los espectros de las muestras en la pantalla del ordenador. Esto nos permite saber la energía de los fotopicos observados en los espectros que se obtengan a partir de ese momento.

IV.4.1.2. Calibrado en eficiencias

Para la realización del calibrado en eficiencias se emplean los patrones descritos en el apartado IV.3.1. los cuales se miden durante 480 minutos. Una vez medido el patrón, se archiva su espectro para un tratamiento posterior. A continuación, con el programa CALIB, se relacionan las áreas de los fotopicos con el número de fotones emitidos y con la energía. El ajuste se realiza

mediante el método de los mínimos cuadrados ponderados a un polinomio en escala logarítmica de la forma:

$$\ln \epsilon_f = \sum a_i (\ln E)^i$$

donde ϵ_f es la eficiencia de recuento, E es la energía del fotón (en KeV), los a_i son los coeficientes del polinomio ajustado. Para conseguir una mayor aproximación a los puntos experimentales se divide el rango de energías en dos zonas:

$$50 < E < 274,6 \text{ y } 274,6 < E < 2000$$

en cada una de las cuales se realiza un ajuste de forma que en un punto denominado “crossover”, que en nuestro equipo corresponde a 274.6 keV, las dos funciones se solapan suavemente. El grado de estos polinomios es dos para la zona de bajas energías y cuatro para la de altas

Las curvas energía-eficiencia así como los coeficientes de los polinomios obtenidos para cada geometría se muestran en el capítulo siguiente (apartado V.1.1.2)

IV.4.2. PATRONES PARA CENTELLEO LÍQUIDO

Cada uno de los patrones descritos en el apartado IV.3.2. se ha medido durante 15 minutos. Con los datos de la actividad añadida y la actividad medida se calculan los parámetros P, Q y R, de la curva de eficiencia. Estos parámetros relacionan el SIE con la eficiencia de la medida.

Los valores de los parámetros P, Q y R, así como las curvas de eficiencia se muestran en el capítulo siguiente (apartado V.1.2.2).

IV.5. PREPARACIÓN DE MUESTRAS PARA LA MEDIDA DE LA RADIACIÓN DE FONDO.

Existe una radiación de fondo natural debida, entre otras causas, a la presencia en el ambiente de una serie de radioisótopos con períodos de semidesintegración largos, que hace que todas las medidas estén afectadas en mayor o menor grado, dependiendo esto de las características de los detectores, blindajes, etc.

IV.5.1. PREPARACIÓN DE FONDOS PARA LA TÉCNICA DE ESPECTROMETRÍA GAMMA.

En la tabla XX se indican algunos de los posibles radionúclidos que contribuyen a la radiación de fondo obtenida en un espectrómetro gamma, junto con sus formas de producción y principales energías de sus radiaciones gamma.

La presencia de esta radiación de fondo interfiere en cualquier medida que se realiza, tanto más cuanto de menor actividad sea la muestra que queremos analizar. El método que se sigue para reducir esta radiación de fondo es aislar los detectores con un blindaje de Plomo. Para estudiar la eficacia del blindaje que hemos construido se colectaron espectros de la radiación de fondo quitando diversas partes del mismo. Así se colectaron espectros sin techo y sin puerta, sin puerta, con la

puerta abierta y con la puerta cerrada. Los resultados obtenidos se presentaron en la tesina de licenciatura (A. Camacho, 1994).

Tabla XX. Posibles radionúclidos presentes en el fondo (Palomares López J., 1993)

Isótopo	Forma de producción	Principales energías en KeV
K-40	Natural	1460,8
Ru-106	Fisión	511,8; 621,8; 1050,4
Cs-137	Fisión	661,6
Ce-144	Fisión	80,1; 133,5
Pr-144	Fisión	696,4; 1489,1; 2185,7
Tl-208	Serie del Th-232	538,1; 860,5; 2614,4
Pb-212	Serie del Th-232	238,6
Bi-212	Serie del Th-232	727,2
Ac-228	Serie del Th-232	911,2; 968,8; 1588,3
Pb-210	Serie del U-238	46,5
Pb-214	Serie del U-238	214,9; 295,2; 352,0
Bi-214	Serie del U-238	609,3; 768,7; 1120,4
Ra-226	Serie del U-238	186,0

Para cada geometría empleada en las medidas de las muestras se mide adecuadamente la radiación de fondo mediante una muestra preparada con dicho fin.

La muestra utilizada para la medida del fondo de filtros atmosféricos consiste en 13, 5, 4 y 1 filtro sin usar, de los que se emplean para la obtención de las muestras, situados dentro de una caja Petri. La utilización de uno u otro fondo depende del tipo de muestra: trimestral, mensual o semanal. La muestra para la medida del fondo de Marinelli consiste en un litro de agua bidestilada contenido

en un Marinelli igual a los empleados en las medidas de las muestras. La muestra para la medida de la radiación de fondo de la geometría agua evaporada consiste en una lámina de plástico termorresistente plegada e introducida en una caja Petri.

IV.5.2. PREPARACIÓN DE FONDOS PARA LA TÉCNICA DE CENTELLEO LÍQUIDO.

La muestra para la medida de la radiación de fondo en las medidas de Estroncio-90 mediante centelleo líquido consiste en un vial que contiene 13,95 ml de agua destilada, 45 μ l de CCl_4 y 6 ml de Instagel. El CCl_4 se le ha adicionado para aproximar el grado de extinción del vial de fondo al de las muestras a medir.

Las muestras para la medida en centelleo líquido de la radiación de fondo en las medidas de ^{222}Rn consisten en un vial que contiene 10 ml de agua destilada y 10 ml de Instagel, o bien 20 ml de tolueno con centelleador. Este último vial de fondo se emplea cuando se aplica la técnica de concentración del ^{222}Rn en las muestras que poseen baja actividad.

IV.6. MEDIDA DE LA RADIACIÓN DE FONDO.

El tiempo empleado en la medida de la radiación de fondo correspondiente a cada geometría es de 4000 minutos. Los espectros correspondientes a la radiación de fondo empleados en espectrometría gamma se suelen medir una vez al trimestre

como mínimo, mientras que la radiación de fondo en las medidas de Estroncio-90 y Radón-222 se mide cada vez que se prepara una muestra.

Los espectros de la radiación de fondo empleados en espectrometría gamma se guardan en la memoria del disco duro del ordenador para su tratamiento posterior, que se realiza con el programa ANALYZ. Se hace un análisis cualitativo de los picos que aparecen en el fondo, así como el cálculo del área neta bajo dichos picos. Todos estos datos se guardan en un archivo, que se empleará posteriormente en el análisis cuantitativo de las muestras.



IV.7. PREPARACIÓN DE LAS MUESTRAS AMBIENTALES.

Una vez recogidas las muestras, se procede a un tratamiento previo a su análisis. Los pretratamientos dependen del tipo de muestra y del tipo de análisis que se vaya a realizar.

IV.7.1. MUESTRAS ATMOSFÉRICAS

Como se indicó anteriormente estas muestras corresponden a partículas de polvo retenidas sobre filtros y a gases radiactivos adsorbidos sobre cartuchos de carbón activo. A ambos tipos de muestras les hemos determinado emisores gamma, para lo cual no es necesario hacer ningún tratamiento de las muestras. Hemos medido 1 filtro o 1 cartucho (muestras semanales), 4 ó 5 filtros dependiendo del número de semanas que tenga el mes (muestras mensuales) y 13 filtros (muestras trimestrales).

IV.7.2. MUESTRAS DE AGUA DE LLUVIA

Para las medidas se mezclan cantidades proporcionales del agua llovida cada mes ya que el análisis se le hace a una muestra representativa del trimestre.

A este tipo de muestras les hemos medido el contenido en emisores gamma y en Sr-90, no obstante, para los objetivos de esta Tesis solo se utilizarán los resultados correspondientes a emisores gamma.

El tratamiento de las muestras para la determinación de emisores gamma, depende de la geometría utilizada para la medida. Si la geometría utilizada es Marinelli de 1 litro, la muestra no recibe ningún tratamiento, sino que se vierte directamente sobre la geometría el volumen adecuado. Esta geometría dejó de utilizarse para la realización de estas medidas debido a que presentaba unos LID mucho mayores que la geometría de agua evaporada.

Si la geometría utilizada es agua evaporada sobre lámina de plástico se vierten 2 litros sobre una bandeja de lámina de Aluminio sobre la que se han extendido dos bolsas de plástico termorresistente. El agua se evapora con infrarrojos durante unas 10 horas. Una vez evaporada toda el agua se dobla la bolsa y se introduce en una caja Petri de plástico de 47 mm de diámetro.

IV.7.3. MUESTRAS DE AGUA SUBTERRÁNEA.

Este tipo de muestras se han medido utilizando dos técnicas de medida, espectrometría gamma y centelleo líquido habiéndose analizado los resultados obtenidos con ambas técnicas.

Para la medida mediante espectrometría gamma no se hace ningún tratamiento de la muestra, lo cual evita pérdidas de ^{222}Rn .

Para la medida mediante centelleo líquido hay que preparar los viales que se introducen en el detector. En las muestras que presentan poca actividad se ha empleado un método de concentración del ^{222}Rn consistente en una extracción utilizando tolueno como agente extractante (Horiuchi *et al.*, 1981; Murakami *et al.*, 1983) habiéndose estudiado diversos factores para optimizar dicha extracción, tales como: cantidad de tolueno, tiempo de agitación, tiempo de separación de ambas fases, etc.

IV.7.4. MUESTRAS DE SUELOS

A este tipo de muestras además de las medidas de radiactividad se les ha realizado un estudio para caracterizar el suelo, para ello se han utilizado las siguientes técnicas:

- Análisis Granulométrico.
- Medida del contenido en Materia Orgánica.

Los resultados obtenidos con las diferentes técnicas se muestran en el capítulo siguiente.

IV.7.4.1. Preparación para la medida de emisores gamma (CSN, 1988b; 1988c; CIEMAT, 1987; Fernández *et al.*, 1985).

El procedimiento seguido para preparar las muestras de suelo para determinar emisores gamma es el siguiente:

- 1- Se homogeneiza bien la muestra.
- 2- Se coloca sobre una bandeja de aluminio y se seca en estufa a 120°C durante 24 horas para eliminar su contenido en agua.
- 3- Se deja enfriar y se pesa. Así se determina el contenido en agua.
- 4- Se tritura en un mortero y se tamiza por un tamiz de 2 mm de malla. Esta muestra se vierte sobre un Marinelli hasta la señal de 1 litro.
- 5- Una vez preparado el Marinelli se realiza una primera medida para detectar los radionúclidos de período corto. Después las muestras se almacenan durante un mes antes de ser medidas con el objetivo de que se alcance el equilibrio secular entre el ^{226}Ra y los descendientes del ^{222}Rn . La necesidad de medir el contenido en ^{226}Ra a partir de los descendientes del ^{222}Rn se debe a que el ^{226}Ra produce un pico gamma que solapa con el producido por el ^{235}U . Por lo tanto, a partir de dicho pico no se puede determinar el contenido en ^{226}Ra ya que no podemos distinguir la emisiones producidas por el ^{226}Ra de las producidas por el ^{235}U .

IV.7.4.2. Preparación para la determinación de ^{90}Sr (CSN, 1988b).

- 1- En un vaso de precipitados de 1000 ml se pesan 50 g de muestra seca (como tal se considera la muestra una vez calcinada y pasada por el tamiz).
- 2- Lentamente se añaden 200 ml de HNO_3 8 N, una vez pasada la efervescencia, se agregan 5 ml de la solución de portador de Sr(II) de 40 mg/ml.
- 3- Se añaden otros 100 ml de HNO_3 8 N, el vaso se cubre con un vidrio de reloj y se digiere la muestra a una temperatura comprendida entre 60-80 °C un mínimo de 8 horas. Se deja enfriar.
- 4- Se filtra, lavando el vaso original varias veces con HNO_3 8 N y agua hasta un volumen aproximado de 500 ml.
- 5- El filtrado se transfiere al vaso original y se evapora hasta unos 100 ml o aparición de sales y se deja enfriar.
- 6- Se añaden 200 ml de HNO_3 concentrado y se evapora hasta un volumen de 100 ml y se deja enfriar varias horas.
- 7- Sobre la muestra fría se añaden 50 ml de HNO_3 concentrado.
- 8- Se agita durante media hora y se filtra la muestra en un aparato de filtración Sartorius con filtro de fibra de vidrio. Una vez que el precipitado está bien seco, se lava con HNO_3 concentrado y se desechan los filtrados.
- 9- En el propio filtro se disuelve el $\text{Sr(NO}_3)_2$ con agua caliente. (Cuando la cantidad de nitratos es muy grande, es necesario hacer una nueva separación, en este caso los nitratos disueltos en agua se llevan a sequedad y se continúa en el apartado 7).
- 10- Se transfiere el filtrado a un vaso de precipitados de 250 ml, se evapora la solución hasta 50 ml y se deja enfriar. Se añade 1 ml de portador de Fe(III) . Se añade NH_4OH concentrado hasta $\text{pH}=9$ para que precipite el Fe(OH)_3 .
- 11- La muestra se calienta a 60-80°C durante 10 minutos y se deja enfriar a temperatura ambiente. Se filtra con filtro de fibra de vidrio; se lava el vaso original con 10 ml de H_2O . Se descartan filtro y precipitado. (Se anota este momento como el de la separación del Ytrio).
- 12- Se ajusta el pH en un rango entre 4 y 6 con HCl 3 N, se añaden 4 ml de tampón de acetato bórico y se calienta.

- 13- Se añade 1 ml de Na_2CrO_4 1 M y se continúa calentando con agitación ocasional durante 30 minutos.
- 14- Se deja enfriar la solución. Se filtra con filtro de fibra de vidrio. Se lava con agua y se descarta el precipitado.
- 15- Se añade amoníaco hasta $\text{pH}=8$.
- 16- Se añaden 30 ml de disolución saturada de Na_2CO_3 y se agita con agitación magnética durante media hora.
- 17- Se filtra con filtro de fibra de vidrio y se lava con Na_2CO_3 diluido.
- 18- El precipitado se seca al vacío durante 10 minutos y se añaden 100 ml de HNO_3 concentrado. El precipitado de $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ resultante se disuelve en agua destilada.
- 19- Se añade NH_4OH concentrado hasta $\text{pH}=8$. Se precipita de nuevo el SrCO_3 con 20 ml de Na_2CO_3 1,5 M.
- 20- Se filtra. Previamente se ha pesado el filtro en una plancheta.
- 21- El filtro se seca bajo lámpara de IR y se pesa. Así se calcula el rendimiento químico gravimétricamente, no obstante el rendimiento químico también se determina mediante absorción atómica.

IV.7.4.3. Determinación del Contenido en Materia Orgánica (M.O.).

Hemos empleado el método de Walkley y Black, cuya técnica operativa ha sido la siguiente (Marañés Corbacho *et al.*, 1994):

- 1- Se toma 1 gramo de tierra seca y tamizada (2 mm) y se coloca en un erlenmeyer de 250 ml, añadiendo 10 ml de dicromato potásico 1 N y 20 ml de ácido sulfúrico concentrado. Se remueve suavemente durante un minuto y se deja reposar una media hora.
- 2- Se añaden unos 150 ml de agua, 10 ml de ácido fosfórico concentrado y, cuando se ha enfriado, 1 ml de difenilamina. La coloración se vuelve azul oscura, casi negra.

- 3- Se valora adicionando sal de Mohr con mucho cuidado, hasta que el color vira del azul-negro a verde-sucio.
- 4- Se valora con la misma sal de Mohr una solución en blanco sin tierra.

IV.7.4.4. Análisis Granulométrico.

- 1- La muestra de suelo seca se disgrega mediante mazo de goma para romper los agregados y se pasa por el tamiz nº10 (2 mm de luz).
- 2- La fracción que no pasa por el tamiz nº10 (fracción gruesa ó gravas), se lava hasta que las aguas de lavado son limpias y se seca en estufa.
- 3- Las gravas una vez lavadas y secas se pasan por los tamices cuyo tamaño se presenta en la tabla XXI:

Tabla XXI. Relación de tamices empleados en la granulometría de las gravas.

nº de tamiz	luz (mm)
1½	38
1	25
¾	19.0
½	12.5
3/8	9.5
¼	6.3
4	4.75
10	2.00

- 4- De la fracción inferior a 2 mm (fracción fina) se toman 100 g y se dejan reposar al menos 18 horas en una disolución de hexametáfosfato sódico 4%, para desagregarla.
- 5- Transcurridas 18 horas se pasa la solución por el tamiz nº 200 (luz 0.075 mm) y se lava hasta que las aguas de lavado son limpias. La fracción que no pasa por el tamiz son las **arenas**.
- 6- Las arenas se secan y se pasan por los tamices cuyas características se presentan en la tabla XXII.

Tabla XXII. Relación de tamices utilizados para la granulometría de las arenas.

nº de tamiz	luz (mm)
20	0.850
30	0.600
40	0.425
50	0.300
70	0.212
140	0.106
200	0.075

- 7- La fracción que pasa por el tamiz nº 200 son los **limos+arcillas**.
- 8- Se elaboran las correspondientes curvas granulométricas.

IV.8. MEDIDA DE LAS MUESTRAS.

IV.8.1. MEDIDA DE EMISORES GAMMA

La medida mediante espectrometría gamma posee la ventaja de que es altamente específica y el tratamiento de los datos está informatizado, ya que se realiza mediante un paquete de programas denominado SPECTRAN-AT. El principal inconveniente que posee esta técnica de medida es que no dispone de cambio automático de muestras.

Esta técnica se la hemos aplicado a todos los tipos de muestras que se presentan en esta Tesis, utilizando el espectrómetro gamma descrito en el apartado III.4.1.

El tiempo empleado en las medidas depende de la actividad y del tipo de muestra. Los cartuchos de radiyodos se han medido durante un tiempo que ha oscilado entre 480 y 2000 min. Las muestras mensuales y trimestrales de partículas de polvo retenidas sobre filtros se han medido durante 1500 min. y las muestras semanales durante 2900 min. Las muestras de agua de lluvia se han medido durante 1500 min. Las muestras de agua subterránea se han medido en la geometría Marinelli de 1 litro, que es el recipiente en el cual se realizó la toma de muestra, (Danali-Cotsaki *et al.* 1993; Countess 1978; Michel *et al.* 1981) durante un tiempo que ha oscilado entre 60 min. y 1000 min. dependiendo de la actividad de la muestra. Las muestras de suelos se han medido durante intervalos de tiempo que han oscilado entre 720 y 1500 min. Por razones estadísticas, las muestras más activas se miden durante menos tiempo y las menos activas durante más tiempo.

Posteriormente, se almacena el espectro de cada muestra en la memoria del disco duro del ordenador. Para el tratamiento de estos datos se emplea el

programa denominado ANALYZ. Con este programa el análisis cualitativo y cuantitativo de la muestra se realiza fundamentalmente en dos etapas:

1- Localización, análisis de los picos y asignación de isótopos a esos picos, para lo cual emplea una librería interna y única que incluye las energías de las emisiones gamma de diferentes radionúclidos. Esta librería se puede modificar mediante el programa PKEDIT. Los datos contenidos en esta librería fueron completados por nosotros ya que faltaban muchos picos producidos por isótopos naturales (**Raddecay 1990**).

En esta etapa el proceso seguido por el programa es el siguiente: cuando encuentra un pico en el espectro de la muestra va a la librería y busca picos que difieran con el encontrado en ± 1 KeV, de ahí que a un mismo pico se le puedan asignar varios radionúclidos.

2- Cálculo de la actividad. El programa calcula la actividad de los radionúclidos que se encuentren en la librería seleccionada para el análisis. Estas librerías se crean con el programa ANEDIT. Se puede utilizar una librería para cada tipo de muestra (aire, lluvia, suelos) ya que habrá radionúclidos que se podrán encontrar en un tipo de muestras pero no en otras.

Al crear estas librerías hay que especificar el pico que queremos que se utilice para el análisis de la actividad de un radionúclido. Esta etapa es muy importante ya que hay que seleccionar picos que no puedan tener interferencias de otros radionúclidos. También hay que especificar la fracción del isótopo que emite esa energía. No suelen emplearse picos que se emitan con menos del 1 % ya que son picos con una probabilidad muy pequeña de producirse y por lo tanto de aparecer en el espectro.

La actividad debida a un radionúclido se calcula mediante el área neta del pico, el tiempo de medida de la muestra, los datos del isótopo previamente tabulados en las librerías y los parámetros de calibración para la geometría en la que se encuentra la muestra. Para el cálculo del área neta al pico correspondiente a la muestra, se le restan las cuentas del fondo.

También se calcula la actividad que tenía la muestra en el momento de la toma de la misma, a esta actividad se le llama actividad corregida por decay.

Si un radionúclido incluido en la librería no presenta actividad, dicha actividad aparecerá como menor que el LID. Para el cálculo del LID emplea el criterio de Currie (1968).

IV.8.2. MEDIDAS MEDIANTE LA TÉCNICA DE CENTELLEO LÍQUIDO.

Las medidas mediante la técnica de centelleo líquido se han realizado utilizando el equipo descrito en el apartado III.4.2.

IV.8.2.1. Medida del ^{222}Rn .

La medida de ^{222}Rn mediante centelleo líquido presenta las siguientes ventajas (Darrall *et al.* 1973; Prichard *et al.* 1977; Parks *et al.* 1978; Horiuchi *et al.* 1981; Chereji I. 1992):

- Gran exactitud (fiabilidad) de las medidas.
- Posibilidad de cambio automático de las muestras, que permite automatizar la medida de muchas muestras.

- La eficiencia de medida de las partículas alfa y beta es del 100 % (Chereji I. 1992; Gaeta R., 1991) (para una ventana de 0-2000 keV), lo cual compensa el alto fondo del detector.
- Se requiere poca cantidad de muestra (10 ml).
- No existe posibilidad de contaminación interna del detector como ocurre con otras técnicas de medida en las que el Radón se transfiere dentro del detector (Horiuchi *et al.* 1981).

No obstante el principal inconveniente que presenta la medida mediante centelleo líquido es su falta de especificidad ya que cualquier emisor α ó β presente en la muestra contribuirá a las cuentas detectadas (Prichard *et al.* 1977). Para solucionar este problema medimos cada muestra durante un período de tiempo inferior a un mes para poder conocer la variación de la actividad con el tiempo, a partir de la cual se determina el período de semidesintegración de los radioisótopos detectados y con ello se pueden identificar.

Para la medida mediante centelleo líquido hay que preparar los viales que se introducen en el detector. Estos viales son de vidrio (Prichard *et al.*, 1977) con un bajo contenido en Potasio para reducir el nivel de fondo. Para conseguir que los tapones cierren herméticamente se han empleado unos tapones modificados empleando el método propuesto por González-Gómez C. (1992) y se han situado unas juntas tóricas de silicona en el cuello del vial donde enrosca el tapón. Los pasos seguidos para preparar los viales son los siguientes (Charles *et al.* 1990):

- Se añaden 10 ml de mezcla centelleadora a cada vial (Seidel *et al.* 1972). Como cocktail de centelleo se ha utilizado una sustancia denominada comercialmente Instagel, fabricada por Packard (Parks *et al.* 1978).

- Se quita el tapón del recipiente de plástico que contiene la muestra y se extraen más de 20 ml con una jeringa.
- Se eliminan las burbujas de aire que haya podido quedar en la jeringa y se ajusta el volumen a 20 ml.
- Se introduce la punta de la aguja bajo la mezcla de centelleo y se traspasan 10 ml de agua (Seidel *et al.* 1972; Parks *et al.* 1978). Se obtienen dos capas, la de agua que queda debajo y la de Instagel encima.
- Los 10 ml de agua restantes se añaden a otro vial.
- Se tapan los viales y se agitan para que se mezclen ambas fases, obteniéndose un gel.
- Se espera 3 horas antes de empezar a medir para que se establezca el equilibrio entre el ^{222}Rn y sus hijos (Andrews *et al.* 1972; Darrall *et al.* 1973; Prichard *et al.* 1977; Countess 1978; Horiuchi *et al.* 1981, etc).

IV.8.2.2. Medida del ^{90}Sr .

Para poder realizar la medida lo primero que hay que hacer es disolver el precipitado de SrCO_3 para lo cual empleamos HNO_3 2,5 N. Se disuelve en un volumen de 30 ml. De esta disolución se toman 14 ml, se ponen en un vial y se añaden 6 ml de Instagel. Se agita bien para homogeneizarlo y se introduce en el detector. De esta forma se preparan dos viales uno que se mide cuando finaliza la separación y otro que se mide cuando han transcurrido al menos 20 días desde la misma. La razón por la cual se hacen dos medidas es para comprobar que la radiactividad encontrada se debe al ^{90}Sr y no a otros emisores beta que pudiera haber en la muestra, ya que si la actividad medida se debe a este isótopo las cuentas netas detectadas deben duplicarse prácticamente en un período de 20 días.

De la disolución obtenida al disolver el precipitado de SrCO_3 se toman 0,5 ml y se diluyen a un volumen final de 50 ml y esta disolución se mide por absorción atómica. De esta forma se obtiene el rendimiento en la separación del Estroncio.

El cálculo de la actividad se realiza a partir de la siguiente fórmula (Gaeta Caballero R., 1991b):

$$A(\text{Bq}/u) = \left[\frac{M - F}{60 \cdot R \cdot V \cdot \varepsilon_f} \right] \frac{G_T}{G_M}$$

donde:

- A : Actividad de la muestra.
 u : Unidad en la que vaya expresada el tamaño de la muestra. Pueden ser Kg, m³, etc.
 M : Cuentas por minuto del vial que contiene a la muestra.
 F : Cuentas por minuto del vial de fondo.
 ε_f : eficiencia de recuento.
 V : Tamaño de la muestra.
 R : Rendimiento de la separación química.
 G_M : Gramos medidos en el vial.
 G_T : Gramos disolución después de disolver el precipitado de SrCO_3 .

Para el cálculo del error se emplea la siguiente expresión (Gaeta Caballero R., 1991b):

$$\sigma = \left[\frac{\sqrt{\left(\frac{F}{t_F}\right) + \left(\frac{M}{t_M}\right)}}{60 \cdot \varepsilon_f \cdot R \cdot V} \right] \cdot \frac{G_T}{G_M}$$

siendo:

- t_F : Tiempo de medida del fondo.
 t_M : Tiempo de medida de la muestra.

El resultado se expresa como $A \pm 2\sigma$.

Para el cálculo de la mínima actividad detectable se utiliza la siguiente expresión (Gaeta Caballero R., 1991b):

$$LID = \left[\frac{3,29 \cdot \left(\sqrt{\frac{F}{t_F} + \frac{F}{t_M}} \right)}{60 \cdot \varepsilon_f \cdot R \cdot V} \right] \cdot \frac{G_T}{G_M}$$

Cuando el tiempo de medida de la muestra y del fondo son iguales el LID se calcula mediante la siguiente expresión (Gaeta Caballero R., 1991b):

$$LID = \left[\frac{4,66 \cdot \left(\sqrt{\frac{F}{t_F}} \right)}{60 \cdot \varepsilon_f \cdot R \cdot V} \right] \cdot \frac{G_T}{G_M}$$



CAPÍTULO V: RESULTADOS Y DISCUSIÓN

V.1. PREPARACIÓN DE LOS EQUIPOS DE MEDIDA

La calibración de los equipos para la medida de los niveles de radiación es esencial para la correcta obtención de los datos que interesan en una vigilancia radiológica. Los objetivos que, además se persiguen con la calibración, son confirmar que las mediciones efectuadas con el aparato son seguras y exactas en todos los intervalos y para todas las energías y confirmar el comportamiento correcto del sistema en las condiciones ambientales extremas de funcionamiento que se han certificado.

En la presente investigación se han utilizado fundamentalmente dos equipos de medida que son un *espectrómetro gamma multicanal* y un *espectrómetro de centelleo líquido*. Para la preparación del *espectrómetro gamma* para realizar un análisis cualitativo y cuantitativo de las muestras hemos tenido que calibrarlo en energías y en eficiencias, también hemos medido la radiación de fondo que llega al detector para cada una de las geometrías utilizadas en las medidas de las muestras ambientales. En el *equipo de centelleo líquido* hemos seleccionado la ventana de trabajo para cada uno de los radionúclidos medidos, hemos medido la eficiencia en esas condiciones y hemos medido la radiación de fondo. Los valores obtenidos en estos calibrados se presentan en los siguientes apartados.

V.1.1. ESPECTRÓMETRO GAMMA MULTICANAL

La medida de radiactividad mediante espectrometría gamma tiene las siguientes etapas previas (Palomares J., 1993):

- Calibración en energías.
- Calibración en eficiencias para cada geometría previamente seleccionada.
- Medida de la radiación de fondo para cada geometría.

V.1.1.1. Calibración en energías.

El espectrómetro gamma multicanal requiere de una calibración en energías, a fin de poder identificar los diferentes picos que aparecen en los espectros para, a partir de ellos, conocer los distintos radionúclidos presentes en las muestras que se analizan. Esta calibración relaciona la energía del fotón incidente absorbido por el cristal con el número del canal en que aparece el fotopico.

La ecuación que relaciona la energía (E) con el canal (C) es de la forma (Spectran AT, 1987):

$$E = A_1 \cdot C^2 + A_2 \cdot C + A_3$$

Las diversas calibraciones efectuadas a lo largo de esta Memoria han mostrado coeficientes de ajuste muy similares. Los estadísticos del conjunto de datos se presentan en la tabla adjunta.

Tabla XXIII. Estadísticos del conjunto de datos correspondientes a los coeficientes de los calibrados en energías.

Coeficiente	Media	Mínimo	Máximo	Rango
A ₁	5.8·10 ⁻⁸	3.3·10 ⁻⁸	7.4·10 ⁻⁸	4.1·10 ⁻⁸
A ₂	0.495938	0.495324	0.496478	1.15·10 ⁻³
A ₃	9.95009	9.79309	10.1947	0.401584

Con los diferentes valores de los coeficientes se ha obtenido una excelente concordancia entre las energías teóricas de los picos del patrón y las obtenidas con la recta de calibrado.

Es de destacar el comportamiento lineal del equipo, como se deduce del valor del coeficiente A_1 , como corresponde a un detector de Ge (Spectran AT, 1987)

V.1.1.2. Calibración en eficiencias

Como se indicó anteriormente (IV.2.3.) la calibración en eficiencias es necesaria para pasar del número de cuentas acumuladas en un fotopico del espectro, a la actividad, en Bq, del radionúclido que emite los fotones gamma correspondientes a esa energía.

La ecuación que relaciona ambas magnitudes es la siguiente (González González J.A. 1993):

$$A = \frac{C}{\varepsilon \cdot I \cdot P \cdot t}$$

siendo: A= Actividad de la muestra (Bq/unidad peso o volumen).

C= Área del fotopico correspondiente (cuentas).

ε = Eficiencia correspondiente a la energía del fotopico.

I= Intensidad del fotopico.

P= Cantidad de muestra (kg, m³).

t= Tiempo que se ha estado colectando el espectro (segundos)

La calibración consiste en obtener la función empírica que relaciona la eficiencia en función de la energía del fotopico para cada configuración geométrica muestra-detector. En el detector usado para la realización de las medidas que se presentan en esta Memoria, dicha función es una ecuación de segundo grado para la zona de bajas energías ($E < 276.4$ KeV) y una ecuación de

grado cuatro para la zona de altas energías ($E > 276.4 \text{ KeV}$) (Spectran AT, 1987). Por lo tanto las eficiencias experimentales se ajustaron a ecuaciones del tipo:

$$\ln(E_f) = a + b \ln(E) + c[\ln(E)]^2 \quad (\text{zona de bajas energías})$$

$$\ln(E_f) = d + e \ln(E) + f[\ln(E)]^2 + g[\ln(E)]^3 + h[\ln(E)]^4 \quad (\text{zona de altas energías})$$

En la tabla XXIV se muestran los coeficientes que relacionan la eficiencia con la energía del pico correspondiente para cada una de las geometrías utilizadas en las medidas de las muestras ambientales. Tales coeficientes se han obtenido con el programa informático CALIB, del paquete de programas Spectran AT.

Generalmente la calibración en eficiencias se hace con un tiempo de medida del patrón que suele ser inferior al de la muestra, optimizándose éste para obtener una incertidumbre similar a la intrínseca del patrón (González González J.A. 1993).

En la figura 19 se representan las curvas de calibrado en eficiencias obtenidas para las diferentes geometrías empleadas, con objeto de apreciar la influencia de la misma en los valores de la eficiencia. Cabe destacar de esta gráfica el paralelismo de las curvas correspondientes a las diversas geometrías. Se puede observar que la menor eficiencia se da para la geometría Marinelli 1 litro y la máxima para la geometría 1 filtro. Este comportamiento de la eficiencia para las diferentes geometrías es debido fundamentalmente a:

- diferencias en el ángulo sólido con el que el detector ve la muestra
- diferente autoabsorción en los diversos sustratos
- diferentes distancias entre el detector y la muestra para cada geometría.

Tabla XXIV. Coeficientes de los calibrados en eficiencia utilizados para cada geometría en los intervalos energéticos que se citan.

Geometría	Rango energético	Coeficientes de las curvas de Eficiencia							
		a	b	c	d	e	f	g	h
Petri 1 Filtro	50 - 276.4 KeV	-11.3849	4.33547	-0.510120					
	276.4 - 1836 KeV	-991.363	588.383	-130.633	12.8312	-0.47138			
Petri 4 Filtros	50 - 276.4 KeV	-9.39049	3.60462	-0.441639					
	276.4 - 1836 KeV	-1318.87	787.879	-176.090	17.4247	-0.645086			
Petri 5 Filtros	50 - 276.4 KeV	-7.99271	3.05217	-0.387342					
	276.4 - 1836 KeV	-1253.60	746.676	-166.365	16.4077	-0.605327			
Petri 13 Filtros	50 - 276.4 KeV	-4.32986	1.51293	-0.230907					
	276.4 - 1836 KeV	-1087.97	650.784	-145.692	14.4401	-0.535591			
Cartucho para ¹³¹ I	50 - 276.4 KeV	-6.61535	2.48624	-0.332538					
	276.4 - 1836 KeV	-1423.87	848.393	-189.086	18.6568	-0.688571			
Petri Agua Evaporada	50 - 276.4 KeV	-7.98183	2.95850	-0.374702					
	276.4 - 1836 KeV	-1196.02	720.708	-162.572	16.2407	-0.607205			
Marinelli 1 litro	50 - 276.4 KeV	-15.8090	5.39778	-0.584982					
	276.4 - 1836 KeV	-482.168	292.753	-66.7428	6.72711	-0.253757			

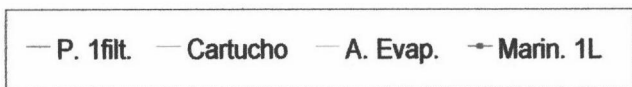
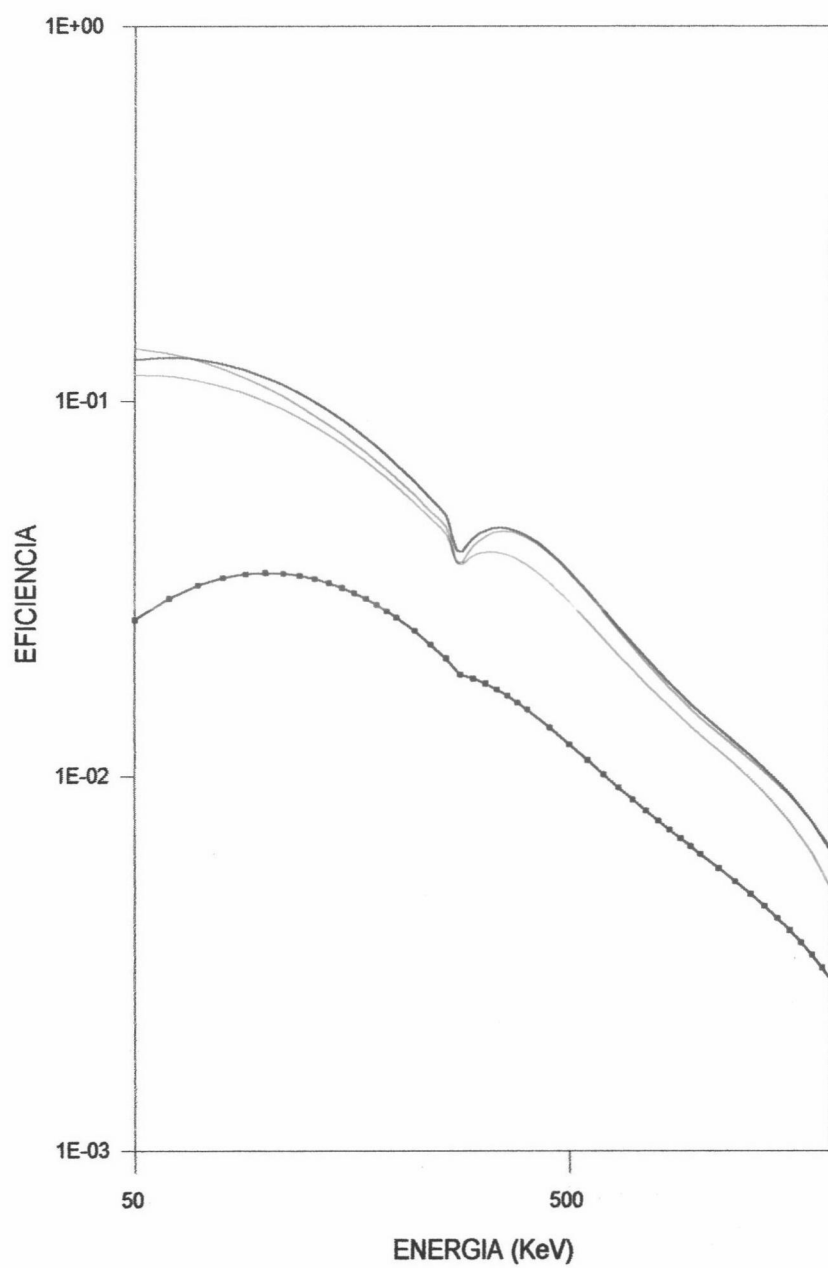


Figura 19. Curvas de calibrado en eficiencias para las diversas geometrias utilizadas

V.1.1.3. Medida de la radiación de fondo.

Durante el período de realización de este trabajo se ha recogido periódicamente una serie de espectros de la radiación de fondo para cada una de las geometrías utilizadas en las medidas de las muestras. Los tiempos de contaje han sido de 4000 minutos y el almacenamiento y tratamiento de los mismos se ha realizado mediante el programa informático ANALYZ, del paquete de programas Spectran AT.

En estos espectros se han detectado radionúclidos naturales pertenecientes a la serie del Th-232 (Ac-228, Pb-212, Tl-208, etc.), a la serie del U-238 (Pb-214, Bi-214, Pb-210, etc.), el K-40 y el radionúclido artificial Cs-137 (apartado IV.5.). Tomando como referencia los radionúclidos ^{210}Pb , ^{214}Bi , ^{137}Cs , ^{228}Ac y ^{40}K , se ha estudiado la evolución de la radiación de fondo bajo los fotopicos de energías 46.5, 609, 661.6, 911 y 1460.8 KeV producidos por cada uno de los radionúclidos anteriores. En la tabla XXV se muestran, en cpm (cuentas por minuto), los valores máximos y mínimos registrados para cada fotopico durante el período estudiado (1993-1997).

Durante el período presentado en esta tesis doctoral se han utilizado dos tipos de cartuchos que hemos denominado cartucho gris y azul respectivamente. El contraste de los fondos debidos a los radionúclidos estudiados ha mostrado los siguientes niveles de significación: Ac-228 $p=0.1513$; Bi-214 $p=0.3504$; K-40 $p=0.0136$; Cs-137 $p=0.0396$; Pb-210 $p=0.0069$. Por lo tanto podemos concluir que los dos tipos de cartuchos difieren en los fondos bajo los fotopicos de los radionúclidos K-40, Cs-137 y Pb-210 para un nivel de confianza del 95%.

Tabla XXV. Estadísticos de la radiación de fondo (en cpm) en los fotopicos de diversos radionúclidos.

Radionúclidos		Geometría				
		Filtro	Cartucho Gris	Cartucho Azul	Agua Evaporada	Marinelli 1 L
Pb-210 (46.5 KeV)	Media	0.74	0.85	0.6	0.81	0.8
	Des. Típica	0.06	0.09	0.1	0.08	0.1
	Mínimo	0.64	0.71	0.5	0.68	0.6
	Máximo	0.82	0.98	0.7	0.93	0.9
	Rango	0.18	0.27	0.2	0.25	0.3
Bi-214 (609 KeV)	Media	2.18	2.19	2.2	2.11	2.1
	Des. Típica	0.09	0.08	0.1	0.06	0.1
	Mínimo	2.08	2.08	2.1	2.01	2.0
	Máximo	2.32	2.33	2.3	2.19	2.2
	Rango	0.24	0.25	0.2	0.18	0.2
Cs-137 (661.6 KeV)	Media	0.19	0.22	0.189	0.18	0.17
	Des. Típica	0.03	0.02	0.008	0.02	0.02
	Mínimo	0.13	0.19	0.182	0.14	0.14
	Máximo	0.22	0.24	0.197	0.20	0.21
	Rango	0.09	0.06	0.015	0.06	0.07
Ac-228 (911 KeV)	Media	0.27	0.28	0.26	0.26	0.27
	Des. Típica	0.02	0.02	0.03	0.01	0.02
	Mínimo	0.24	0.25	0.24	0.24	0.23
	Máximo	0.31	0.30	0.29	0.28	0.30
	Rango	0.07	0.05	0.05	0.04	0.07
K-40 (1460.8 KeV)	Media	1.66	2.02	2.12	1.66	1.63
	Des. Típica	0.05	0.04	0.06	0.04	0.06
	Mínimo	1.60	1.96	2.07	1.60	1.53
	Máximo	1.71	2.08	2.20	1.72	1.72
	Rango	0.11	0.12	0.13	0.12	0.19

El análisis de la varianza de la radiación de fondo bajo los fotopicos anteriores ha mostrado la existencia de diferencias significativas entre los fondos de los siguientes radionúclidos y geometrías:

*Ac-228 no ha mostrado diferencias significativas entre los fondos obtenidos para cada geometría.

*Bi-214 ha mostrado diferencias significativas entre la geometría cartucho azul, agua evaporada y Marinelli 1L.

*Cs-137 ha mostrado diferencias significativas entre la geometría cartucho gris y las demás geometrías.

*K-40 ha mostrado diferencias significativas entre la geometría cartucho y las demás geometrías.

*Pb-210 no ha mostrado diferencias significativas entre los fondos obtenidos para cada geometría.

Según lo obtenido del análisis de la varianza la geometría cartucho presenta una radiación de fondo, en general, mayor que la de las demás geometrías para los radionúclidos K-40 y Cs-137. Esto se podría deber al relleno de carbón activo que presenta esta geometría.

V.1.2. ESPECTRÓMETRO DE CENTELLEO LÍQUIDO.

Para la realización de medidas mediante un equipo de centelleo líquido debemos realizar las siguientes etapas previas:

- selección de la ventana de trabajo o zona del espectro donde se encuentra el radionúclido que se desea medir.
- medida de la eficiencia del detector en dicha ventana.
- medida de la radiación de fondo.

V.1.2.1. Selección de la ventana de trabajo.

La selección de la ventana de trabajo se ha realizado calculando el factor de mérito modificando la posición de los discriminadores en la forma ya descrita

en el apartado IV.2.4. del capítulo de métodos experimentales.

En las medidas del contenido en Rn-222 de las aguas subterráneas mediante centelleo líquido hemos trabajado usando tanto la ventana completa del detector que incluye energías de 0-2000 KeV como utilizando una ventana que hemos denominado del Radón. La posición óptima encontrada para nuestro equipo fue de 15 y 300 para el discriminador inferior y superior respectivamente.

Las posiciones óptimas encontradas para las medidas de ^{90}Sr en nuestro equipo fueron 15 y 400 para el discriminador inferior y superior respectivamente.

V.1.2.2. Medida de la eficiencia del detector en la ventana de trabajo.

V.1.2.2.1. Eficiencia en la ventana del ^{222}Rn .

Dado que no disponíamos de patrón de ^{222}Rn , para conocer la eficiencia del detector en esta ventana tuvimos que comparar la actividad detectada en dicha ventana con la detectada en la ventana completa (0-2000 keV) donde la eficiencia del centelleo líquido es del 100% en la detección de partículas alfa y beta (Prichard *et al.*, 1977; Park *et al.*, 1978; Murakami *et al.*, 1979; Prichard *et al.*, 1980; Horiuchi *et al.*, 1981; Schönhofer *et al.*, 1987; Chereji, 1992; Schönhofer F., 1992; Suárez Del Rey, 1993; Theodórsson, 1996). Procediendo de esta forma hemos obtenido que la eficiencia del detector es de $90 \pm 5 \%$ ($n=468$). El análisis de la varianza mostró diferencias significativas de la eficiencia con la fecha en la cual se realizó la medida y con la actividad de la

muestra, siendo la eficiencia inferior al 90% en las muestras menos activas. La variación de la eficiencia con la fecha es una consecuencia de la variación de ésta con las muestras medidas ya que las fechas que presentaron eficiencias menores fueron fechas en las cuales se midieron muestras con poca actividad. El análisis de la correlación entre el SIE de las muestras medidas y la eficiencia del detector mostró que no estaban correlacionados en el rango utilizado para el estudio SIE 0.350-0.430 y eficiencia 70-99% (n=229).

En la figura 20 se muestra el histograma de frecuencias del porcentaje medido en la ventana del Radón respecto a las cuentas detectadas en la ventana completa.

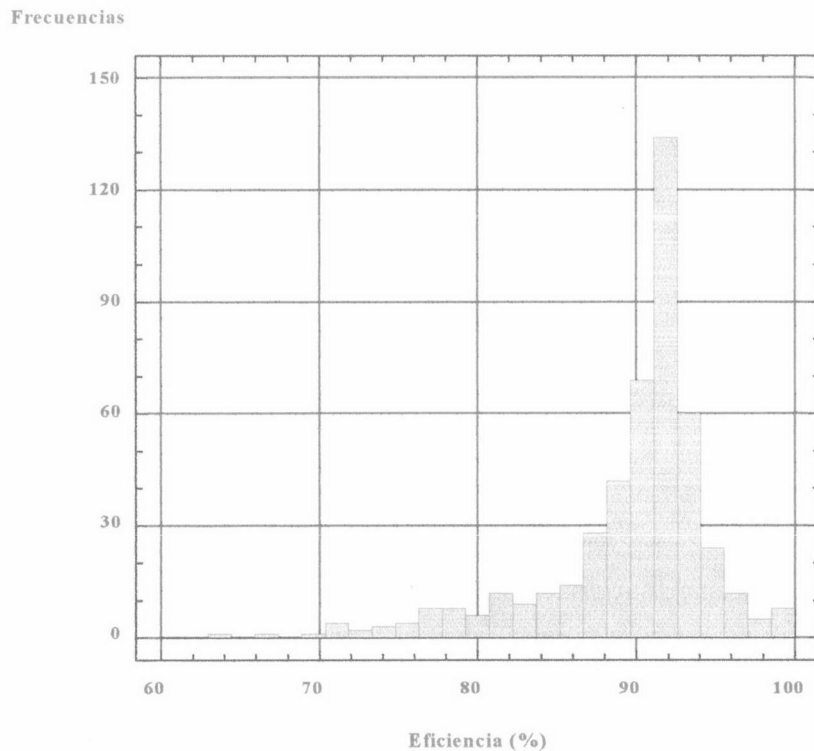


Figura 20. Histograma de frecuencias de la eficiencia en la ventana del Rn-222.

V.1.2.2.2. Eficiencia en la ventana del $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$

Para la medida de la eficiencia del detector en esta ventana hemos utilizado los patrones descritos en el capítulo de métodos experimentales (apartado IV.3.2.1.)

La ecuación que relaciona la eficiencia con el SIE, se puede aproximar a una ecuación de segundo grado del tipo:

$$E_f = P \cdot (\text{SIE})^2 + Q \cdot (\text{SIE}) + R$$

En la tabla siguiente se presentan los datos utilizados para el cálculo de los parámetros de esta ecuación:

Tabla XXVI. Datos para el calibrado en eficiencias del $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$.

VIAL	EFICIENCIA (%)	SIE
1	79.3	0.339
2	78.5	0.316
3	64.8	0.239
4	40.1	0.170
5	22.5	0.125

Con los datos anteriores, los valores de los parámetros obtenidos son:

$$P = -992.9 \qquad Q = 732.2 \qquad R = -54.2$$

La curva de eficiencia obtenida se muestra en la figura 21.

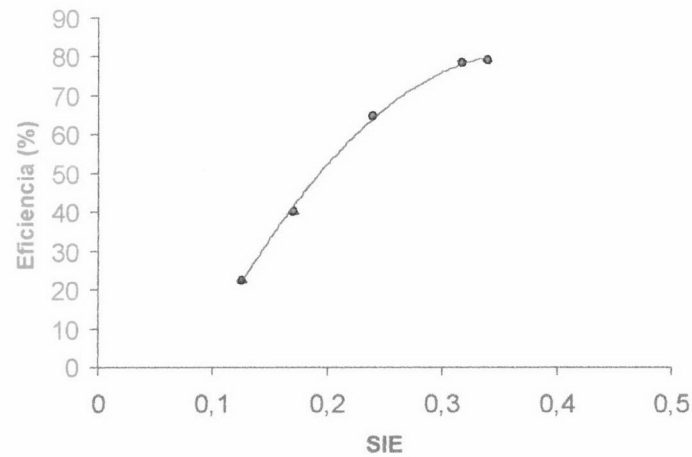


Figura 21. Curva de eficiencia del patrón de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$

V.1.2.3. Medida de la radiación de fondo.

Cuando se quiere determinar la actividad de una muestra debe tenerse en cuenta la contribución de la radiación de fondo en la medida, por ello debemos medir la radiación de fondo para lo cual se ha preparado un vial para cada radionúclido medido (apartado IV.5.2). En las medidas de ^{222}Rn como hemos trabajado usando dos ventanas hemos medido la radiación de fondo en cada una de ellas, también hemos medido el fondo en un vial que contenía tolueno cuando se ha utilizado la técnica de concentración mediante tolueno. En la figura 22 se presenta la evolución de los fondos utilizados en las determinaciones de ^{222}Rn durante la campaña de muestreo en las dos ventanas de trabajo. De esta figura cabe destacar que el valor del fondo permanece prácticamente constante. En la tabla XXVII se presentan los valores máximos, mínimos y medios de los fondos.

Tabla XXVII. Estadísticos de los fondos medidos en centelleo líquido.

Estadístico	Fondo completo (cpm)	Fondo Radón (cpm)	Fondo Tolueno (cpm)	Fondo ⁹⁰ Sr/ ⁹⁰ Y (cpm)
Media	51 ± 2	21.2 ± 0.8	51 ± 1	19.3 ± 0.6
Máximo	55.0 ± 0.5	23.0 ± 0.3	52.7 ± 0.8	20.7 ± 0.2
Mínimo	48.7 ± 0.4	19.8 ± 0.3	48.9 ± 0.6	18.0 ± 0.2
Rango	6.3	3.2	3.8	2.7

En la siguiente tabla se presentan los Límites de Detección (L_D) y de Cuantificación (L_Q) en cpm y en Bq/L para las diversas zonas de trabajo. Estos límites se han calculado empleando las fórmulas de Currie (1968).

Tabla XXVIII. LID en centelleo líquido para las diversas zonas de trabajo.

LID	Completo	Radón-222	Tolueno	Estroncio-90
L_D	4.2-4.5 cpm	2.7-2.9 cpm	4.2-4.4 cpm	0.37-0.40 cpm
	7.1-7.5 Bq/L	4.5-4.9 Bq/L	3.5-3.7 Bq/L	1.1-1.2 Bq/kg
L_Q	13.6-14.4 cpm	9.0-9.6 cpm	13.6-14.1 cpm	1.2-1.3 cpm
	22.7-24.0 Bq/L	15-16 Bq/L	11.4-11.1 Bq/L	3.6-3.9 Bq/kg

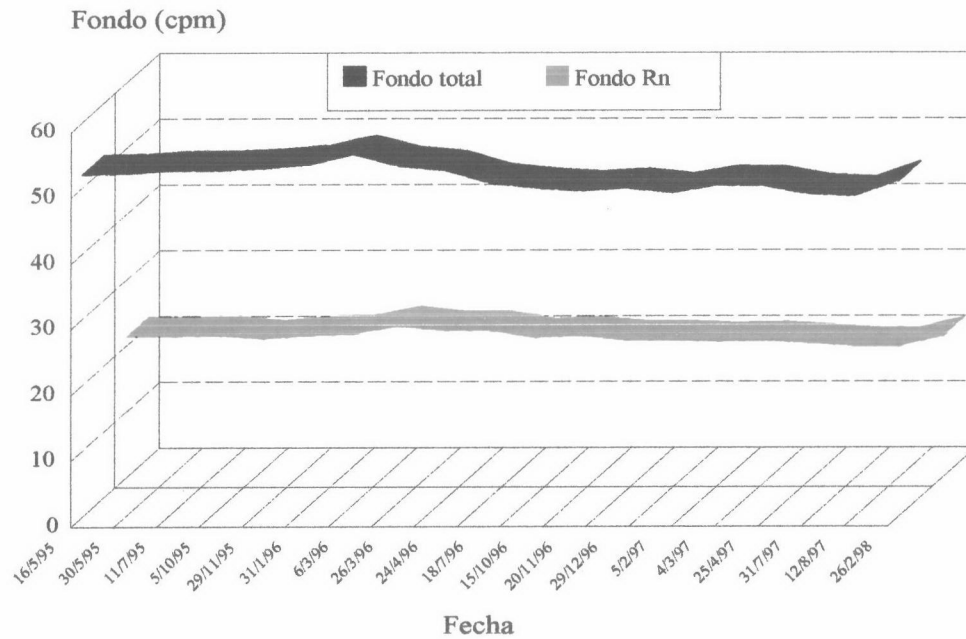


Figura 22. Evolución de los fondos utilizados en las medidas de ^{222}Rn .

V.2.MUESTRAS ATMOSFÉRICAS.

En la atmósfera se han tomado muestras de partículas de polvo que han sido colectadas sobre filtros, y se han adsorbido gases sobre cartuchos de carbón activo. En las muestras de partículas de polvo se han detectado los radionúclidos ^7Be y ^{210}Pb . En los cartuchos de carbón activo no se ha detectado el radioisótopo ^{131}I en ninguna de las 260 muestras medidas en el período 1993-1997.

V.2.1.DETERMINACIÓN DE ^{131}I EN MUESTRAS SEMANALES.

La determinación de ^{131}I mediante espectrometría gamma se ha realizado en la

región 364,5 KeV, que es donde el radionúclido anterior produce un fotopico con una intensidad de 81,2% (Raddecay, 1990). En las tablas XXIX a XXXIII se presentan los resultados obtenidos en la medida de los cartuchos semanales del período 1993-1997.

Tabla XXIX. Valores de actividad de I-131 en muestras semanales de 1993

Muestra	Período Muestreado	Volumen (m ³)	LID.10 ⁻⁴ (Bq/m ³)	Muestra	Período muestreado	Volumen (m ³)	LID.10 ⁻⁴ (Bq/m ³)
I-5	30/12-05/01	261.00	6.2	I-31	30/06-07/07	302.40	3.0
I-6	05/01-12/01	303.30	5.0	I-32	07/07-14/07	302.40	3.0
I-7	12/01-19/01	302.40	5.4	I-33	14/07-21/07	302.40	3.0
I-8	19/01-26/01	300.60	5.2	I-34	21/07-27/07	273.66	3.3
I-9	26/01-02/02	284.40	5.3	I-35	27/07-03/08	286.20	3.1
I-10	02/02-11/02	334.80	4.6	I-36	03/08-11/08	302.97	3.1
I-11	11/02-18/02	308.46	5.2	I-37	11/08-18/08	302.40	3.1
I-12	18/02-25/02	310.80	5.1	I-38	18/08-25/08	302.40	3.0
I-13	25/02-02/03	304.20	5.2	I-39	25/08-01/09	302.40	3.0
I-14	02/03-10/03	311.76	5.1	I-40	01/09-08/09	304.20	3.1
I-15	10/03-17/03	301.75	5.1	I-41	08/09-15/09	302.40	3.1
I-16	17/03-24/03	303.30	5.2	I-42	15/09-22/09	302.40	3.2
I-17	24/03-31/03	302.52	5.1	I-43	22/09-29/09	302.40	3.0
I-18	31/03-07/04	302.40	5.2	I-44	29/09-06/10	305.10	2.9
I-19	07/04-14/04	302.40	5.3	I-45	06/10-13/10	302.40	3.0
I-20	14/04-21/04	302.40	5.2	I-46	13/10-20/10	308.22	3.0
I-21	21/04-28/04	302.40	5.3	I-47	20/10-27/10	307.09	3.0
I-22	28/04-05/05	302.40	5.3	I-48	27/10-03/11	303.25	3.0
I-23	05/05-12/05	302.40	5.1	I-49	03/11-10/11	321.79	2.8
I-24	12/05-19/05	302.40	5.4	I-50	10/11-17/11	304.23	3.0
I-25	19/05-26/05	302.40	5.3	I-51	17/11-24/11	320.05	2.9
I-26	26/05-02/06	302.40	3.7	I-52	24/11-01/12	305.30	3.0
I-27	02/06-08/06	302.40	3.7	I-53	01/12-09/12	312.18	3.0
I-28	08/06-15/06	302.40	3.7	I-54	09/12-17/12	356.55	2.6
I-29	15/06-22/06	302.40	3.0	I-55	17/12-23/12	292.50	3.2
I-30	22/06-30/06	326.13	2.8	I-56	23/12-29/12	297.60	3.1

Tabla XXX. Valores de actividad de I-131 en muestras semanales de 1994

Muestra	Período Muestreado	Volumen (m ³)	LID.10 ⁻⁴ (Bq/m ³)	Muestra	Período muestreado	Volumen (m ³)	LID.10 ⁻⁴ (Bq/m ³)
I-57	29/12-05/01	307.20	2.9	I-83	30/06-07/07	302.01	2.7
I-58	05/01-12/01	303.00	2.9	I-84	07/07-14/07	302.40	2.6
I-59	12/01-19/01	302.88	3.0	I-85	14/07-21/07	288.69	2.8
I-60	19/01-26/01	302.61	3.0	I-86	21/07-28/07	297.99	2.6
I-61	26/01-03/02	333.76	2.8	I-87	28/07-04/08	295.20	2.7
I-62	03/02-10/02	302.13	3.0	I-88	04/08-12/08	358.20	2.2
I-63	10/02-17/02	302.37	3.0	I-89	12/08-18/08	250.80	3.1
I-64	17/02-24/02	304.98	3.0	I-90	18/08-25/08	328.80	2.4
I-65	24/02-03/03	302.40	2.9	I-91	25/08-01/09	292.40	2.7
I-66	03/03-10/03	302.10	3.0	I-92	01/09-08/09	313.32	2.6
I-67	10/03-15/03	242.32	3.8	I-93	08/09-15/09	289.35	2.8
I-68	15/03-23/03	347.40	2.6	I-94	15/09-21/09	269.55	2.9
I-69	23/03-31/03	340.36	2.6	I-95	21/09-28/09	293.91	2.6
I-70	31/03-07/04	302.78	3.0	I-96	28/09-05/10	306.44	2.6
I-71	07/04-13/04	292.24	3.1	I-97	05/10-11/10	260.67	3.0
I-72	13/04-20/04	302.31	3.0	I-98	11/10-18/10	287.76	2.9
I-73	20/04-27/04	302.19	2.6	I-99	18/10-24/10	259.83	3.0
I-74	27/04-04/05	302.40	2.6	I-100	24/10-02/11	314.12	2.6
I-75	04/05-11/05	302.25	2.7	I-101	02/11-09/11	301.83	2.8
I-76	11/05-18/05	301.83	2.6	I-102	09/11-16/11	288.33	2.9
I-77	18/05-25/05	311.67	2.5	I-103	16/11-22/11	257.25	3.3
I-78	25/05-01/06	289.62	2.8	I-104	22/11-30/11	350.79	2.4
I-79	01/06-08/06	303.27	2.6	I-105	30/11-07/12	299.16	2.8
I-80	08/06-15/06	310.44	2.5	I-106	07/12-12/12	232.55	3.7
I-81	15/06-22/06	302.61	2.6	I-107	12/12-19/12	302.55	2.8
I-82	22/06-30/06	324.00	2.5	I-108	19/12-27/12	335.31	2.5

Tabla XXXI. Valores de actividad de I-131 en muestras semanales de 1995

Muestra	Período Muestreado	Volumen (m ³)	LID.10 ⁻⁴ (Bq/m ³)	Muestra	Período muestreado	Volumen (m ³)	LID.10 ⁻⁴ (Bq/m ³)
I-109	27/12-03/01	316.05	2.7	I-135	28/06-05/07	304.59	3.0
I-110	03/01-11/01	328.95	2.4	I-136	05/07-12/07	301.92	3.2
I-111	11/01-18/01	312.81	2.5	I-137	12/07-19/07	302.58	3.2
I-112	18/01-25/01	304.35	2.5	I-138	19/07-25/07	257.85	3.8
I-113	25/01-02/02	281.01	2.9	I-139	25/07-01/08	300.66	3.2
I-114	02/02-08/02	273.81	2.9	I-140	01/08-09/08	335.55	2.8
I-115	08/02-15/02	301.50	2.6	I-141	09/08-16/08	298.80	3.2
I-116	15/02-22/02	302.46	2.6	I-142	16/08-21/08	218.91	4.3
I-117	22/02-01/03	303.75	2.6	I-143	21/08-30/08	338.13	2.7
I-118	01/03-08/03	301.44	2.6	I-144	30/08-05/09	312.72	3.0
I-119	08/03-15/03	303.63	2.6	I-145	05/09-13/09	349.20	2.8
I-120	15/03-22/03	301.50	2.6	I-146	13/09-20/09	287.13	3.3
I-121	22/03-29/03	284.07	3.1	I-147	20/09-27/09	299.55	3.2
I-122	29/03-05/04	304.59	3.1	I-148	27/09-04/10	304.62	4.2
I-123	05/04-12/04	302.04	3.1	I-149	04/10-11/10	305.22	4.4
I-124	12/04-19/04	313.20	3.0	I-150	11/10-17/10	258.30	5.4
I-125	19/04-26/04	301.71	3.1	I-151	17/10-25/10	342.18	3.9
I-126	26/04-04/05	328.14	2.9	I-152	25/10-31/10	261.84	5.1
I-127	04/05-10/05	277.02	3.3	I-153	31/10-08/11	342.99	4.0
I-128	10/05-17/05	301.11	3.0	I-154	08/11-14/11	255.45	6.2
I-129	17/05-24/05	302.79	3.1	I-155	14/11-22/11	360.12	3.8
I-130	24/05-31/05	302.16	3.2	I-156	22/11-28/11	258.57	5.6
I-131	31/05-07/06	301.35	3.2	I-157	28/11-05/12	293.46	7.7
I-132	07/06-14/06	291.15	3.2	I-158	05/12-13/12	334.81	4.0
I-133	14/06-21/06	312.39	3.0	I-159	13/12-20/12	314.28	4.4
I-134	21/06-28/06	300.69	3.0	I-160	20/12-27/12	305.55	3.3

Tabla XXXII. Valores de actividad de I-131 en muestras semanales de 1996

Muestra	Período Muestreado	Volumen (m ³)	LID.10 ⁻⁴ (Bq/m ³)	Muestra	Período muestreado	Volumen (m ³)	LID.10 ⁻⁴ (Bq/m ³)
I-161	27/12-03/01	300.66	3.1	I-187	26/06-03/07	306.33	6.8
I-162	03/01-10/01	302.40	5.3	I-188	03/07-10/07	299.73	4.9
I-163	10/01-17/01	285.00	4.8	I-189	10/07-17/07	292.83	5.0
I-164	17/01-24/01	303.27	8.6	I-190	17/07-24/07	308.40	4.8
I-165	24/01-31/01	307.80	4.4	I-191	24/07-31/07	308.82	4.5
I-166	31/01-07/02	297.00	7.3	I-192	31/07-07/08	301.71	4.7
I-167	07/02-14/02	292.77	4.6	I-193	07/08-14/08	297.00	5.0
I-168	14/02-21/02	295.32	4.5	I-194	14/08-21/08	300.60	4.6
I-169	21/02-27/02	270.00	5.0	I-195	21/08-28/08	293.40	4.6
I-170	27/02-05/03	301.95	4.4	I-196	28/08-04/09	299.37	4.7
I-171	05/03-12/03	304.20	4.9	I-197	04/09-11/09	297.72	4.5
I-172	12/03-20/03	330.99	2.9	I-198	11/09-18/09	303.96	4.3
I-173	20/03-27/03	301.44	4.3	I-199	18/09-25/09	292.17	4.6
I-174	27/03-03/04	295.20	4.5	I-200	25/09-02/10	299.52	4.0
I-175	03/04-10/04	300.60	4.4	I-201	02/10-09/10	302.76	4.4
I-176	10/04-17/04	300.39	4.0	I-202	09/10-16/10	303.75	4.5
I-177	17/04-24/04	305.37	4.3	I-203	16/10-23/10	298.50	4.4
I-178	24/04-30/04	258.90	4.8	I-204	23/10-30/10	308.43	4.3
I-179	30/04-08/05	342.84	4.2	I-205	30/10-06/11	299.79	4.4
I-180	08/05-15/05	299.40	4.3	I-206	06/11-13/11	304.29	4.4
I-181	15/05-22/05	313.20	4.8	I-207	13/11-20/11	300.93	4.7
I-182	22/05-29/05	306.54	5.0	I-208	20/11-27/11	302.31	4.4
I-183	29/05-05/06	303.90	6.9	I-209	27/11-04/12	295.92	4.0
I-184	05/06-12/06	294.63	4.5	I-210	04/12-11/12	302.40	4.0
I-185	12/06-19/06	305.28	4.5	I-211	11/12-18/12	303.30	4.0
I-186	19/06-26/06	296.10	5.0	I-212	18/12-25/12	300.60	9.6

Tabla XXXIII. Valores de actividad de I-131 en muestras semanales de 1997

Muestra	Período Muestreado	Volumen (m ³)	LID.10 ⁻⁴ (Bq/m ³)	Muestra	Período muestreado	Volumen (m ³)	LID.10 ⁻⁴ (Bq/m ³)
I-213	25/12-01/01	302.01	6.4	I-239	25/06-02/07	298.26	4.4
I-214	01/01-08/01	303.15	4.4	I-240	02/07-09/07	298.17	4.4
I-215	08/01-15/01	302.79	4.6	I-241	09/07-16/07	308.37	4.4
I-216	15/01-22/01	297.72	4.4	I-242	16/07-23/07	300.93	4.5
I-217	22/01-29/01	305.55	4.4	I-243	23/07-30/07	304.71	4.4
I-218	29/01-05/02	295.80	4.5	I-244	30/07-06/08	301.50	6.6
I-219	05/02-12/02	307.57	4.3	I-245	06/08-13/08	302.67	4.4
I-220	12/02-19/02	300.39	4.5	I-246	13/08-20/08	302.19	4.4
I-221	19/02-26/02	303.75	4.0	I-247	20/08-27/08	299.16	6.8
I-222	26/02-05/03	302.40	4.6	I-248	27/08-03/09	304.86	4.7
I-223	05/03-12/03	301.92	3.1	I-249	03/09-10/09	297.70	4.5
I-224	12/03-19/03	300.18	4.4	I-250	10/09-17/09	304.14	4.3
I-225	19/03-26/03	304.05	6.8	I-251	17/09-25/09	354.45	4.2
I-226	26/03-02/04	299.97	5.0	I-252	25/09-02/10	287.55	6.0
I-227	02/04-09/04	300.33	4.8	I-253	02/10-08/10	275.16	5.0
I-228	09/04-16/04	301.95	4.4	I-254	08/10-15/10	286.59	4.6
I-229	16/04-23/04	304.98	4.4	I-255	15/10-22/10	298.65	4.5
I-230	23/04-30/04	300.84	5.4	I-256	22/10-29/10	306.96	4.2
I-231	30/04-07/05	301.14	4.5	I-257	29/10-05/11	303.09	4.3
I-232	07/05-14/05	304.14	4.8	I-258	05/11-12/11	300.60	4.3
I-233	14/05-21/05	302.34	5.2	I-259	12/11-19/11	304.92	4.3
I-234	21/05-28/05	296.82	6.5	I-260	19/11-26/11	302.22	4.5
I-235	28/05-04/06	306.00	4.4	I-261	26/11-03/12	302.01	4.4
I-236	04/06-11/06	299.16	4.5	I-262	03/12-10/12	302.40	4.8
I-237	11/06-18/06	309.60	4.4	I-263	10/12-17/12	304.20	4.8
I-238	18/06-25/06	296.19	4.8	I-264	17/12-24/12	306.60	15.8

En la tabla XXXIV se presentan los estadísticos de los resultados presentados en las tablas anteriores.

Tabla XXXIV. Estadísticos de los valores del LID del ^{131}I correspondientes al período 1993-1997.

Estadístico	Datos 1993	Datos 1994	Datos 1995	Datos 1996	Datos 1997
Media	$3.9 \cdot 10^{-4}$	$2.8 \cdot 10^{-4}$	$3.4 \cdot 10^{-4}$	$4.8 \cdot 10^{-4}$	$4.9 \cdot 10^{-4}$
Desviación típica	$1.1 \cdot 10^{-4}$	$0.3 \cdot 10^{-4}$	$1.0 \cdot 10^{-4}$	$1.1 \cdot 10^{-4}$	$1.7 \cdot 10^{-4}$
Mínimo	$2.6 \cdot 10^{-4}$	$2.2 \cdot 10^{-4}$	$2.4 \cdot 10^{-4}$	$2.9 \cdot 10^{-4}$	$3.1 \cdot 10^{-4}$
Máximo	$6.2 \cdot 10^{-4}$	$3.8 \cdot 10^{-4}$	$7.7 \cdot 10^{-4}$	$9.6 \cdot 10^{-4}$	$15.8 \cdot 10^{-4}$
Rango	$3.6 \cdot 10^{-4}$	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$5.3 \cdot 10^{-4}$	$6.7 \cdot 10^{-4}$	$12.7 \cdot 10^{-4}$

De los resultados presentados en las tablas anteriores se deduce que la actividad de ^{131}I ha sido inferior al LID en las 260 muestras medidas en el período 1993-97. Las variaciones en el LID de nuestro equipo se deben a variaciones en el tiempo de medida del espectro que ha estado comprendido entre 480-2000 minutos, a variaciones en la cantidad de muestra y a variaciones en el tiempo transcurrido entre la toma de la muestra y la medida de la misma (tiempo de *decay*).

V.2.2.DETERMINACIÓN DE ^7Be EN MUESTRAS SEMANALES.

La determinación de ^7Be mediante espectrometría gamma se ha realizado en la región 477.6 KeV que es donde este radionúclido produce un fotopico con una intensidad del 10.42 %.

En este apartado se presentan valores semanales de ^7Be correspondientes a la

medida de 132 muestras de polvo atmosférico obtenidas en el período 8/03/95--24/12/97. Su medida mediante espectrometría gamma, ha mostrado una actividad superior al Límite Inferior de Detección (LID), debida al ^7Be en la totalidad de las mismas. Haremos un análisis, orientado a describir los rasgos más destacados del comportamiento del ^7Be a escala local, estudiando su variación temporal y la influencia que ejercen sobre él determinadas variables meteorológicas.

En las tablas XXXV a XL se presentan las actividades de ^7Be detectadas en las muestras semanales del período anteriormente citado, el volumen muestreado, la cantidad de aerosoles y el Límite Inferior de Detección.

Tabla XXXV. Valores de actividad de ^7Be en muestras semanales del primer semestre de 1995.

Muestra	Período Muestreado	Volumen (m ³)	Cantidad muestra (µg/m ³)	LID · 10 ⁻³ (Bq/m ³)	Actividad · 10 ⁻³ (Bq/m ³)
Be-1	08/03--15/03	303.63	76.4	1.49	2.6 ± 1.8
Be-2	15/03--22/03	301.50	88.9	1.50	4.5 ± 1.5
Be-3	22/03--29/03	284.07	110.2	1.59	6.9 ± 1.5
Be-4	29/03--05/04	304.59	100.8	1.49	5.9 ± 1.0
Be-5	05/04--12/04	302.04	99.3	1.50	4.4 ± 1.2
Be-6	12/04--19/04	313.20	69.6	1.45	3.8 ± 1.1
Be-7	19/04--26/04	301.71	52.0	1.50	3.7 ± 1.2
Be-8	26/04--04/05	328.14	62.2	1.38	3.6 ± 1.2
Be-9	04/05--10/05	277.02	84.8	1.63	4.7 ± 1.2
Be-10	10/05--17/05	301.11	72.4	1.50	4.5 ± 1.1
Be-11	17/05--24/05	302.79	104.0	1.50	4.5 ± 0.9
Be-12	24/05--31/05	302.16	98.3	1.50	5.9 ± 0.9
Be-13	31/05--07/06	301.35	111.8	1.50	5.0 ± 0.9
Be-14	07/06--14/06	291.15	81.7	1.55	5.2 ± 1.0
Be-15	14/06--21/06	312.39	81.3	1.45	5.3 ± 0.8
Be-16	21/06--28/06	300.69	70.5	1.51	4.2 ± 0.8

Tabla XXXVI. Valores de actividad de ^7Be en muestras semanales del segundo semestre de 1995.

Muestra	Período muestreado	Volumen (m^3)	Cantidad muestra ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	LID $\cdot 10^{-3}$ (Bq/m^3)	Actividad $\cdot 10^{-3}$ (Bq/m^3)
Be-1	28/06--05/07	304.59	76.2	1.49	7.1 ± 1.0
Be-2	05/07--12/07	301.92	92.1	1.50	7.9 ± 1.5
Be-3	12/07--19/07	302.58	103.1	1.50	7.1 ± 1.3
Be-4	19/07--25/07	257.85	149.3	1.76	7.7 ± 1.1
Be-5	25/07--01/08	300.66	98.8	1.51	9.7 ± 1.5
Be-6	08/11--14/11	255.45	84.6	1.77	5.6 ± 2.1
Be-7	14/11--22/11	360.12	86.6	1.26	5.7 ± 1.0
Be-8	22/11--28/11	258.57	56.9	1.75	2.8 ± 1.2
Be-9	28/11--05/12	293.46	73.6	1.54	3.9 ± 1.2
Be-10	5/12--13/12	334.81	59.4	1.35	3.7 ± 0.9
Be-11	13/12--20/12	314.28	61.1	1.44	3.2 ± 1.1
Be-12	20/12--27/12	305.55	52.0	1.48	2.4 ± 1.1

En este período no se pudieron medir las muestras semanales colectadas en Agosto, Septiembre y Octubre debido a problemas con el detector; sin embargo, sí se midieron las muestras mensuales. Estas muestras al presentar una actividad mayor, presentaron actividad superior al LID durante más tiempo y se pudieron medir cuando el detector volvió a estar disponible.

Tabla XXXVII. Valores de actividad de ^7Be en las muestras semanales del primer semestre de 1996.

Muestra	Período muestreado	Volumen (m^3)	Cantidad muestra ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	LID $\cdot 10^{-3}$ (Bq/m^3)	Actividad $\cdot 10^{-3}$ (Bq/m^3)
Be-1	27/12--03/01	300.66	43.6	1.51	5.2 ± 1.0
Be-2	03/01—10/01	302.40	49.3	1.50	3.3 ± 1.0
Be-3	10/01—17/01	285.00	68.4	1.59	4.2 ± 1.1
Be-4	17/01—24/01	303.27	44.5	1.49	3.6 ± 1.1
Be-5	24/01—31/01	307.80	55.9	1.47	2.4 ± 1.0
Be-6	31/01—07/02	297.00	45.5	1.53	3.6 ± 1.0
Be-7	07/02—14/02	292.77	76.2	1.55	4.2 ± 1.4
Be-8	14/02—21/02	295.32	51.1	1.53	3.2 ± 1.1
Be-9	21/02—27/02	270.00	85.6	1.68	5.9 ± 1.1
Be-10	27/02—05/03	301.95	75.5	1.50	4.8 ± 1.1
Be-11	05/03—12/03	304.20	62.5	1.49	3.2 ± 1.1
Be-12	12/03—20/03	330.99	55.0	1.37	6.7 ± 1.1
Be-13	20/03—27/03	301.44	85.6	1.50	6.1 ± 1.0
Be-14	27/03—03/04	295.20	61.3	1.53	4.8 ± 0.9
Be-15	03/04—10/04	300.60	51.2	1.51	5.5 ± 1.2
Be-16	10/04—17/04	300.39	91.5	1.51	8.1 ± 1.2
Be-17	17/04—24/04	305.37	85.8	1.48	6.7 ± 1.0
Be-18	24/04—30/04	258.90	68.4	1.75	6.8 ± 1.2
Be-19	30/04—08/05	342.84	36.5	1.32	4.0 ± 0.9
Be-20	08/05—15/05	299.40	51.1	1.51	8.0 ± 1.2
Be-21	15/05—22/05	313.20	56.5	1.45	5.1 ± 1.1
Be-22	22/05—29/05	306.54	85.1	1.48	9.2 ± 1.2
Be-23	29/05—05/06	303.90	87.9	1.49	7.1 ± 1.4
Be-24	05/06—12/06	294.63	87.6	1.54	7.6 ± 1.2
Be-25	12/06—19/06	305.28	62.2	1.48	9.8 ± 1.1
Be-26	19/06—26/06	296.10	68.6	1.53	8.1 ± 1.0

Tabla XXXVIII. Valores de la actividad de ^7Be en las muestras semanales del segundo semestre de 1996.

Muestra	Período de Muestreo	Volumen (m^3)	Cantidad muestra ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	LID $\cdot 10^{-3}$ (Bq/m^3)	Actividad $\cdot 10^{-3}$ (Bq/m^3)
Be-1	26/06—03/07	306.33	100.2	1.48	8.4 ± 1.1
Be-2	03/07—10/07	299.73	83.1	1.51	6.2 ± 1.1
Be-3	10/07—17/07	292.83	82.6	1.55	8.0 ± 1.2
Be-4	17/07—24/07	308.40	90.1	1.47	9.5 ± 1.2
Be-5	24/07—31/07	308.82	87.1	1.47	9.6 ± 1.1
Be-6	31/07—07/08	301.71	85.5	1.50	8.0 ± 1.1
Be-7	07/08—14/08	297.00	76.8	1.53	7.9 ± 1.4
Be-8	14/08—21/08	300.60	51.9	1.51	7.6 ± 1.0
Be-9	21/08—28/08	293.40	70.6	1.54	7.4 ± 1.2
Be-10	28/08—04/09	259.37	84.0	1.75	7.5 ± 1.2
Be-11	04/09—11/09	297.72	72.9	1.52	7.3 ± 1.2
Be-12	11/09—18/09	303.96	46.7	1.49	6.7 ± 1.1
Be-13	18/09—25/09	292.17	43.1	1.55	4.4 ± 1.1
Be-14	25/09—02/10	299.52	63.4	1.51	7.8 ± 1.1
Be-15	02/10—09/10	302.76	71.7	1.50	5.4 ± 1.1
Be-16	09/10—16/10	303.75	57.6	1.49	5.4 ± 1.1
Be-17	16/10—23/10	298.50	51.3	1.52	4.5 ± 0.9
Be-18	23/10—30/10	308.43	86.6	1.47	6.5 ± 1.0
Be-19	30/10—06/11	299.79	74.7	1.51	7.7 ± 1.2
Be-20	06/11—13/11	304.29	68.0	1.49	5.9 ± 1.2
Be-21	13/11—20/11	300.93	36.9	1.51	3.5 ± 1.0
Be-22	20/11—27/11	302.34	50.3	1.50	3.9 ± 1.1
Be-23	27/11—04/12	295.92	75.0	1.53	2.8 ± 1.4
Be-24	04/12—11/12	302.40	39.4	1.50	2.2 ± 0.9
Be-25	11/12—18/12	303.30	32.0	1.49	2.8 ± 1.0
Be-26	18/12—25/12	300.60	18.3	1.51	2.8 ± 1.0

Tabla XXXIX. Valores de actividad de ^7Be en las muestras semanales del primer semestre de 1997.

Muestra	Período del muestreo	Volumen (m^3)	Cantidad muestra ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	LID $\cdot 10^{-3}$ (Bq/m^3)	Actividad $\cdot 10^{-3}$ (Bq/m^3)
Be-1	25/12--01/01	302.31	37.4	1.50	6.0 ± 1.2
Be-2	01/01--08/01	303.15	27.4	1.49	2.8 ± 0.9
Be-3	08/01--15/01	302.79	48.9	1.50	2.6 ± 1.0
Be-4	15/01--22/01	297.72	44.3	1.52	3.4 ± 1.1
Be-5	22/01--29/01	305.55	85.4	1.48	3.3 ± 1.0
Be-6	29/01--05/02	295.80	92.0	1.53	5.1 ± 1.0
Be-7	05/02--12/02	307.50	82.3	1.47	5.8 ± 1.1
Be-8	12/02--19/02	300.39	78.2	1.51	6.2 ± 1.1
Be-9	19/02--26/02	303.75	110.0	1.49	6.1 ± 1.1
Be-10	26/02--05/03	302.40	94.9	1.50	7.7 ± 1.1
Be-11	05/03--12/03	301.92	102.7	1.50	7.8 ± 1.2
Be-12	12/03--19/03	300.18	94.6	1.51	8.2 ± 1.2
Be-13	19/03--26/03	304.05	72.7	1.49	6.0 ± 1.0
Be-14	26/03--02/04	299.97	50.3	1.51	5.3 ± 1.1
Be-15	02/04--09/04	300.33	67.9	1.51	6.9 ± 1.1
Be-16	09/04--16/04	301.95	49.3	1.50	4.8 ± 1.0
Be-17	16/04--23/04	304.98	35.7	1.48	4.3 ± 1.4
Be-18	23/04--30/04	300.84	64.5	1.50	6.7 ± 1.0
Be-19	30/04--07/05	301.14	68.1	1.50	4.3 ± 0.9
Be-20	07/05--14/05	304.14	60.2	1.49	4.8 ± 1.2
Be-21	14/05--21/05	302.34	47.0	1.50	7.1 ± 1.2
Be-22	21/05--28/05	296.82	54.6	1.53	5.4 ± 0.7
Be-23	28/05--04/06	306.00	46.7	1.48	5.5 ± 1.0
Be-24	04/06--11/06	299.16	44.5	1.51	3.6 ± 1.0
Be-25	11/06--18/06	309.60	51.7	1.46	7.2 ± 1.4
Be-26	18/06--25/06	296.19	53.3	1.53	6.2 ± 1.1

Tabla XL. Valores de actividad de ^7Be en las muestras semanales del segundo semestre de 1997.

Muestra	Período de muestreo	Volumen (m^3)	Cantidad muestra ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	LID $\cdot 10^{-3}$ (Bq/m^3)	Actividad $\cdot 10^{-3}$ (Bq/m^3)
Be-1	25/06--02/07	298.26	55.7	1.52	7.2 ± 1.2
Be-2	02/07--09/07	298.17	63.1	1.52	5.4 ± 1.1
Be-3	09/07--16/07	308.37	64.9	1.47	7.8 ± 1.2
Be-4	16/07--23/07	300.93	74.1	1.50	6.5 ± 1.1
Be-5	23/07--30/07	304.71	73.8	1.49	9.1 ± 1.5
Be-6	30/07--06/08	301.50	75.6	1.50	7.0 ± 1.1
Be-7	06/08--13/08	302.67	57.5	1.50	7.4 ± 1.1
Be-8	13/08--20/08	302.19	66.5	1.50	8.1 ± 1.2
Be-9	20/08--27/08	299.16	73.5	1.51	6.0 ± 1.1
Be-10	27/08--03/09	304.86	60.4	1.49	6.6 ± 1.1
Be-11	03/09--10/09	299.70	72.4	1.51	7.7 ± 1.1
Be-12	10/09--17/09	304.14	77.3	1.49	7.4 ± 1.1
Be-13	17/09--25/09	354.45	70.2	1.28	8.0 ± 1.1
Be-14	25/09--02/10	287.55	52.5	1.58	6.1 ± 1.0
Be-15	02/10--08/10	275.16	60.7	1.65	5.3 ± 1.6
Be-16	08/10--15/10	286.59	54.4	1.58	3.9 ± 1.0
Be-17	15/10--22/10	298.65	72.0	1.52	4.8 ± 0.9
Be-18	22/10--29/10	306.96	44.6	1.48	4.6 ± 0.9
Be-19	29/10--05/11	303.09	50.8	1.49	7.8 ± 1.0
Be-20	05/11--12/11	300.60	27.6	1.51	3.4 ± 0.7
Be-21	12/11--19/11	304.92	47.9	1.49	3.1 ± 0.9
Be-22	19/11--26/11	302.22	31.4	1.50	5.1 ± 1.2
Be-23	26/11--03/12	302.01	85.1	1.50	2.5 ± 1.0
Be-24	03/12--10/12	302.40	55.2	1.50	3.1 ± 0.8
Be-25	10/12--17/12	304.20	61.1	1.49	5.8 ± 1.3
Be-26	17/12--24/12	306.60	38.5	1.48	2.7 ± 1.1

Para determinar si una distribución normal representa un buen ajuste para los datos, y por lo tanto, el conjunto de datos queda definido por la media y la desviación típica, se han realizado los test de Kolmogorof-Smirnof (test K-S) y el de la χ^2 (este test se ha realizado cuando lo ha permitido el número de datos disponibles), para lo cual se ha utilizado el programa Statgraphics V.6.0 (González-Carmona *et al.* 1994; Spiegel M., 1995). Los niveles de significación obtenidos se presentan en la tabla XLI.

Tabla XLI. Niveles de significación del conjunto de datos semanales de ^7Be .

Período	Número datos	Test K-S	Test χ^2
1 ^{er} Ttre.95	3	0.9998	—
2 ^o Ttre.95	13	0.9858	—
3 ^{er} Ttre.95	5	0.7590	—
4 ^o Ttre.95	7	0.9047	—
1 ^{er} Ttre.96	13	0.8214	—
2 ^o Ttre.96	13	0.9843	—
3 ^{er} Ttre.96	13	0.7486	—
4 ^o Ttre.96	13	0.9330	—
1 ^{er} Ttre.97	13	0.7618	—
2 ^o Ttre.97	13	0.9538	—
3 ^{er} Ttre.97	13	0.9965	—
4 ^o Ttre.97	13	0.9595	—
1995	28	0.7842	0.4037
1996	52	0.7513	0.1027
1997	52	0.8967	0.2046
1995-1997	132	0.5872	0.3250

Los niveles de significación obtenidos, superiores a 0.05, llevan a concluir que las muestras proceden de una distribución normal (Cuadros *et al.*, 1994; González-

Carmona *et al.*, 1994).

En la tabla XLII se presenta un resumen de los estadísticos de los datos presentados en las tablas XXXV a XL, habiéndose analizado los datos trimestralmente y anualmente. Estos parámetros se han calculado mediante el programa informático Statgraphics V.6.0.

Tabla XLII. Estadísticos del conjunto de datos de ^7Be correspondientes al período 8/03/95--24/12/97.

Período	Número datos	Media aritmética	Desviación Típica	Máximo	Mínimo	Rango
1 ^{er} Ttre.95	3	4.67	2.15	6.9	2.6	4.3
2 ^o Ttre.95	13	4.67	0.76	5.9	3.6	2.3
3 ^{er} Ttre.95	5	7.90	1.07	9.7	7.1	2.6
4 ^o Ttre.95	7	3.90	1.30	5.7	2.4	3.3
1 ^{er} Ttre.96	13	4.34	1.31	6.7	2.4	4.3
2 ^o Ttre.96	13	6.98	1.73	9.8	4.0	5.8
3 ^{er} Ttre.96	13	7.58	1.35	9.6	4.4	5.2
4 ^o Ttre.96	13	4.71	1.90	7.8	2.2	5.6
1 ^{er} Ttre.97	13	5.46	1.91	8.2	2.6	5.6
2 ^o Ttre.97	13	5.55	1.18	7.2	3.6	3.6
3 ^{er} Ttre.97	13	7.25	0.97	9.1	5.4	3.7
4 ^o Ttre.97	13	4.48	1.55	7.8	2.5	5.3
1995	28	5.05	1.76	9.7	2.4	7.3
1996	52	5.90	2.09	9.8	2.2	7.6
1997	52	5.68	1.73	9.1	2.5	6.6
1995-97	132	5.63	1.90	9.8	2.2	7.6

Los valores medios nos permiten efectuar comparaciones entre promedios de diferentes observatorios y entre diferentes períodos en un mismo observatorio. Las medias aritméticas obtenidas al analizar los datos trimestralmente muestran valores máximos en las muestras colectadas el tercer trimestre en los tres años medidos,

mientras que los valores mínimos se dan en el primer o en el cuarto trimestre dependiendo del año. La evolución de los niveles medios mensuales de la actividad de ^7Be en aerosoles para el período medido se presenta en las tablas XLVI a XLVIII, en las cuales también se aprecian valores máximos de la actividad coincidentes con los meses de verano (tercer trimestre) y valores mínimos en otoño e invierno (cuarto y primer trimestre respectivamente). Este hecho es igualmente apreciado al representar los datos trimestrales, como se muestra en la figura 23. Este comportamiento temporal es el que corresponde a una zona de latitudes medias (Feely *et al.*, 1989; Baeza *et al.*, 1996; Liger E., 1996; Rufo Pérez M.M., 1994; Dominici *et al.*, 1995; EUR, 1996; EUR, 1997).

La comparación de las medias trimestrales ha mostrado existencia de diferencias significativas en las actividades correspondientes al segundo trimestre de los tres años medidos. Las medias anuales no presentaron diferencias significativas entre sí, y se encuentran dentro del rango $5.1 \pm 0.3 \text{ mBq/m}^3$ obtenido por Feely *et al.* 1989 en un estudio sobre los factores que causan variaciones estacionales de ^7Be en el aire, en diferentes latitudes del continente americano para ciudades de latitud similar a la de Granada.

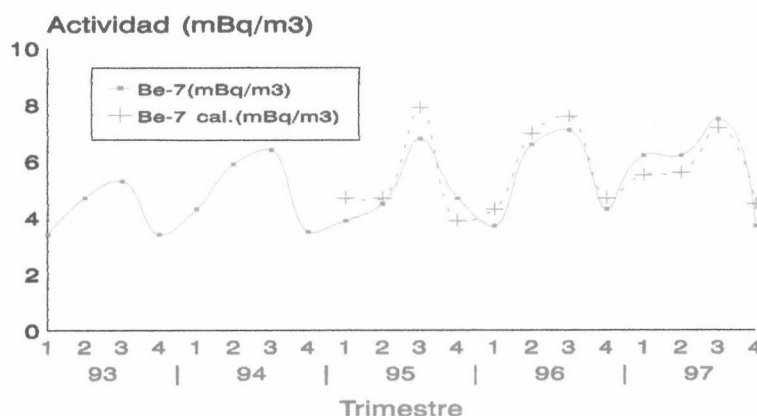


Figura 23. Actividad de ^7Be en muestras trimestrales del período 1993-97.

En la figura 23 se representan las actividades medidas en las muestras trimestrales colectadas en el período 1993-97, así como los valores medios trimestrales obtenidos a partir de las medidas de las muestras semanales colectadas en el período 1995-97. De esta figura cabe destacar la variación temporal anteriormente citada, máximos en el tercer trimestre y mínimos en el primer y cuarto trimestre.

Una vez realizado el estudio de la variación temporal de los datos semanales, se ha estudiado la influencia de ciertas variables meteorológicas en las variaciones de los valores de ^7Be . Las variables estudiadas han sido: precipitación semanal (mm), tiempo que ha estado lloviendo (min.), tiempo que ha estado sin llover (min.), presión atmosférica (hPa), temperatura ($^{\circ}\text{C}$) y visibilidad (hm). Los datos meteorológicos han sido suministrados por el Centro Meteorológico Territorial de Andalucía Oriental.

El análisis de la correlación existente entre la actividad semanal de ^7Be y las variables anteriormente citadas ha mostrado los coeficientes de correlación que se presentan en la tabla XLIII. Para que exista correlación entre las variables con un nivel de confianza del 95% el nivel de significación, p (valor que aparece en la tabla entre paréntesis), debe ser menor o igual a 0.05 (González Carmona *et al.*, 1994; Spiegel M., 1995; Cuadros *et al.*, 1994). Por lo tanto la actividad ha estado correlacionada con todas las variables meteorológicas anteriormente citadas, excepto la actividad de 1995 que no ha estado correlacionada con la presión, para un nivel de confianza del 95%, sin embargo sí que lo está si trabajamos con un nivel del 90%.

Tabla XLIII. Coeficientes de correlación entre la actividad semanal de ^7Be y ciertas variables meteorológicas y nivel de significación asociado.

Variables Relacionadas	Datos 1995 (n=28)	Datos 1996 (n=52)	Datos 1997 (n=52)	Datos 95-97 (n=132)
^7Be /Cantidad lluvia	-0.4035 (0.0332)	-0.5258 (0.0001)	-0.4065 (0.0028)	-0.4216 (0.0000)
^7Be /Tiempo lloviendo	-0.4865 (0.0087)	-0.6214 (0.0000)	-0.4924 (0.0002)	-0.5054 (0.0000)
^7Be /Tiempo seco	0.7354 (0.0000)	0.4314 (0.0014)	0.6174 (0.0000)	0.4678 (0.0000)
^7Be /Presión	<u>0.3529 (0.0655)</u>	0.4618 (0.0006)	0.3317 (0.0163)	0.3760 (0.0000)
^7Be /Cantidad aerosoles	0.6831 (0.0001)	0.6526 (0.0000)	0.4245 (0.0017)	0.4563 (0.0000)
^7Be /Temperatura	0.7296 (0.0000)	0.8091 (0.0000)	0.5981 (0.0000)	0.6811 (0.0000)
^7Be /Visibilidad	0.2704 (0.1641)	0.5061 (0.0001)	0.4438 (0.0010)	0.3808 (0.0000)

Al realizar una regresión lineal simple entre la variables con las cuales está relacionada la actividad de ^7Be , se han obtenido los coeficientes de determinación que se presentan en la tabla XLIV.

Tabla XLIV. Coeficientes de determinación de los datos semanales de ^7Be y las variables meteorológicas.

Variable independiente	Datos 1995	Datos 1996	Datos 1997	Datos 95-97
Cantidad lluvia	16.28%	14.19%	16.53%	17.77%
Tiempo lloviendo	23.66%	38.61%	24.25%	25.55%
Tiempo sin llover	54.08%	18.61%	38.11%	21.89%
Presión	—	21.33%	11.01%	14.14%
Temperatura	53.24%	65.46%	35.78%	46.4%
Cantidad de aerosoles	46.66%	42.57%	18.02%	20.8%

El coeficiente de determinación es el porcentaje de la variabilidad de la variable dependiente (Actividad) que queda explicada por la variable independiente (dato

meteorológico). Por lo tanto las variables que mejor explican la variación de la actividad son el tiempo que ha estado sin llover y la temperatura para los datos de 1995 y 1997, que son años en los que el 57 y 54% respectivamente de las semanas no llovió, mientras que para los datos de 1996, año en el cual el 40% de las semanas no llovió, tales variables son la temperatura y la cantidad de aerosoles.

A continuación para seleccionar entre las variables meteorológicas con las cuales ha estado correlacionada la actividad las más relevantes en la explicación de la variación de la misma, hemos realizado una regresión múltiple por etapas, habiendo obtenido las ecuaciones y coeficientes de determinación que se presentan en la tabla XLV.

Tabla XLV. Ecuaciones obtenidas mediante regresión múltiple de los datos semanales de ^7Be y las variables meteorológicas.

Datos 1995	$A=(13\pm 4)\cdot 10^{-2} t^a + (33\pm 9)\cdot 10^{-3} \text{pevol}$	$R^2=0.9566$
Datos 1996	$A=(20\pm 3)\cdot 10^{-2} t^a + (42\pm 7)\cdot 10^{-3} \text{pevol}$	$R^2=0.9683$
Datos 1997	$A=(32\pm 7)\cdot 10^{-3} \text{pevol} + (15\pm 2)\cdot 10^{-4} \text{vis.} + (19\pm 6)\cdot 10^{-6} \text{tsec.}$	$R^2=0.9592$
Datos 95-97	$A=(15\pm 2)\cdot 10^{-2} t^a + (34\pm 4)\cdot 10^{-3} P - (6\pm 3)\cdot 10^{-4} \text{tllov} + (14\pm 6)\cdot 10^{-6} \text{tsec}$	$R^2=0.9505$

siendo:

t^a = temperatura ($^{\circ}\text{C}$)

pevol= cantidad de muestra ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

vis= visibilidad (hm)

tsec= tiempo sin llover (min.)

tllov= tiempo lloviendo (min.)

P= presión (hPa)

En las figuras 24 a 26 se representa la evolución temporal de la actividad de ^7Be y la cantidad de aerosoles ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) correspondientes a los períodos muestreados.

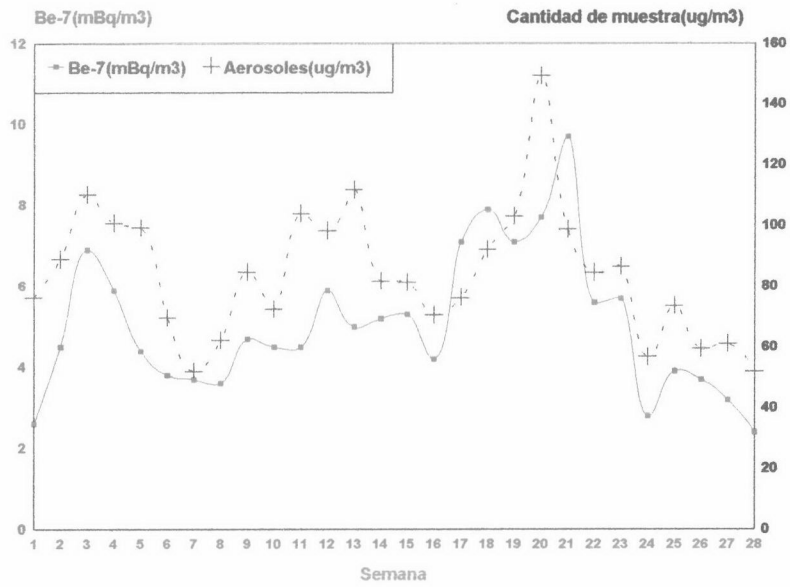


Figura 24. Actividad de ⁷Be y cantidad de aerosoles en 1995

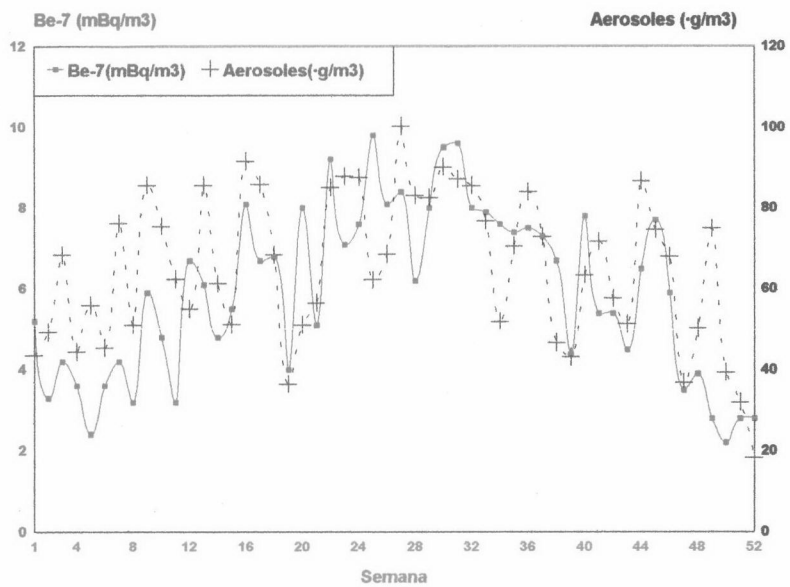


Figura 25. Actividad de ⁷Be y cantidad de aerosoles en 1996.

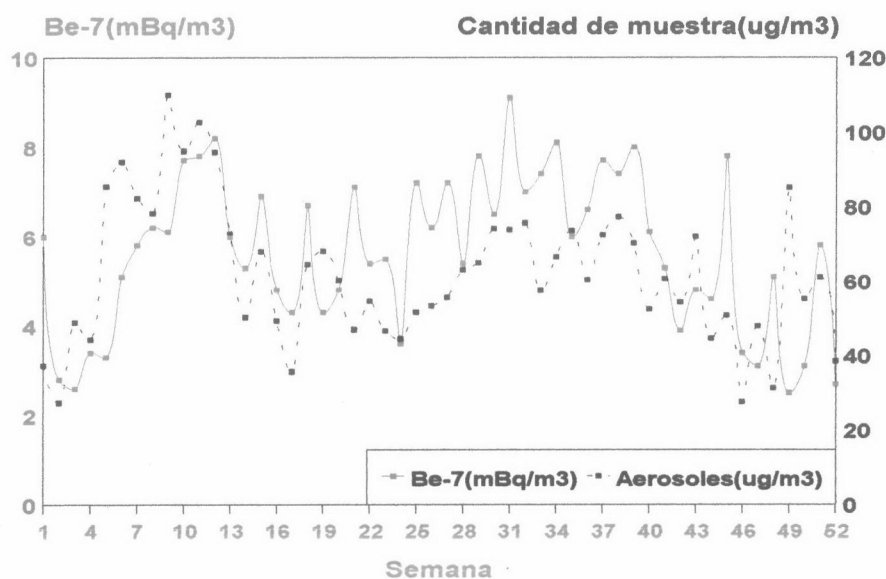


Figura 26. Actividad de ^7Be y cantidad de aerosoles en 1997.

V.2.3. DETERMINACIÓN DE ^7Be Y ^{210}Pb EN MUESTRAS MENSUALES Y TRIMESTRALES.

La medida de ^{210}Pb mediante espectrometría gamma se ha realizado en la región de 46.5 KeV que es donde este radionúclido produce un fotopico con una intensidad del 4.05%.

Uno de los objetivos perseguidos en esta Tesis es comparar el comportamiento temporal y la influencia de ciertas variables meteorológicas en las actividades de los radionúclidos naturales ^7Be y ^{210}Pb , al tener ambos un origen diferente. Para ello se han tenido que realizar medidas mensuales y trimestrales, ya que el ^{210}Pb se encuentra en las muestras ambientales en cantidades tan pequeñas que sólo se detecta en algunas muestras mensuales y en muestras trimestrales. Para las medidas mensuales se

acumulan cuatro o cinco muestras semanales, dependiendo del mes, y se miden juntas en la misma caja Petri. La acumulación de las muestras permite medir una cantidad de muestra mayor, que tiene por lo tanto, una actividad mayor, de ahí que en algunas muestras mensuales sí se haya detectado ^{210}Pb . Sin embargo presenta el inconveniente de que reduce el número de medidas que se pueden hacer anualmente por lo que la significación estadística de estas muestras es menor. Dado que no se ha detectado ^{210}Pb en todas las muestras mensuales hemos realizado medidas trimestrales. En estas medidas la cantidad de muestra si es lo suficientemente grande como para detectar ^{210}Pb en todas ellas. Para realizar estas medidas hemos medido juntos 13 filtros que son las semanas de que consta un trimestre.

Los datos trimestrales se utilizarán también para estudiar la eficiencia de la lluvia en la eliminación de las partículas atmosféricas que contienen a los radionúclidos objeto de nuestro estudio.

En las tablas XLVI, XLVIII y L se presentan valores mensuales de ^7Be y ^{210}Pb en muestras atmosféricas y en la tabla LII se presentan los valores trimestrales correspondientes al período 1993-1997.

Tabla XLVI. Valores de actividad de ^7Be y ^{210}Pb en las muestras mensuales de 1995.

MES	ACTIVIDAD ^7Be (mBq/m ³)	ACTIVIDAD ^{210}Pb (mBq/m ³)	CANTIDAD DE LLUVIA (l/m ²)
Enero	4.2 ± 0.4	0.42 ± 0.29	11.5
Febrero	3.6 ± 0.4	< 0.67	8.0
Marzo	4.5 ± 0.5	< 0.78	21.0
Abril	6.8 ± 1.8	0.66 ± 0.28	12.0
Mayo	8.5 ± 1.6	0.58 ± 0.40	0
Junio	6.3 ± 1.2	0.89 ± 0.40	16.0
Julio	8.3 ± 0.9	1.28 ± 0.42	0
Agosto	8.4 ± 0.8	1.56 ± 0.53	21.7
Septiembre	5.3 ± 0.5	0.75 ± 0.34	4.0
Octubre	6.4 ± 0.6	1.24 ± 0.47	5.0
Noviembre	5.0 ± 0.5	< 0.83	38.5
Diciembre	2.8 ± 0.6	0.58 ± 0.50	87.4

En la tabla siguiente se presentan los coeficientes de correlación y el grado de significación de los valores mensuales de actividad de ^7Be y ^{210}Pb con las variables meteorológicas.

Tabla XLVII. Coeficientes de correlación de los datos mensuales de ^7Be y ^{210}Pb correspondientes a 1995 y las variables meteorológicas.

VARIABLES RELACIONADAS	^{210}Pb (n=9)	^7Be (n=12)
Cantidad lluvia	-0.3433 (p=0.3657)	-0.6249 (p=0.0298)
Tiempo lloviendo	-0.3940 (p=0.2941)	-0.6871 (p=0.0136)
Días de lluvia > 1 mm	-0.3925 (p=0.2961)	-0.7724 (p=0.0032)
Días de secano	0.2328 (p=0.5466)	0.5783 (p=0.0489)
Presión	-0.2404 (p=0.5333)	-0.4272 (p=0.1660)
Temperatura	0.7707 (p=0.0151)	0.8736 (p=0.0002)

Tabla XLVIII. Valores de actividad de ^7Be y ^{210}Pb en las muestras mensuales de 1996.

MES	ACTIVIDAD ^7Be (mBq/m ³)	ACTIVIDAD ^{210}Pb (mBq/m ³)	CANTIDAD DE LLUVIA (l/m ²)
Enero	3.1 ± 0.4	< 0.74	189.1
Febrero	4.2 ± 0.5	< 0.96	65
Marzo	4.6 ± 0.5	< 0.91	43
Abril	5.9 ± 0.5	< 0.77	23
Mayo	6.4 ± 0.6	< 0.83	90
Junio	7.6 ± 0.6	< 0.88	7
Julio	8.0 ± 0.6	0.82 ± 0.43	9
Agosto	8.1 ± 0.7	0.87 ± 0.53	4
Septiembre	6.0 ± 0.6	0.59 ± 0.52	43
Octubre	5.9 ± 0.5	0.75 ± 0.44	46
Noviembre	5.6 ± 0.6	< 1.22	85
Diciembre	2.3 ± 0.7	< 1.00	147.6

En la tabla siguiente se presentan los coeficientes de correlación y el grado de significación de los valores mensuales de actividad de ^7Be y ^{210}Pb con las variables meteorológicas.

Tabla IXL. Coeficientes de correlación de los datos mensuales de ^7Be y ^{210}Pb correspondientes a 1996 y las variables meteorológicas.

Variables relacionadas	^{210}Pb (n=4)	^7Be (n=12)
Cantidad lluvia	-0.9800 (p=0.0200)	-0.8337 (p=0.0008)
Tiempo lloviendo	-0.9851 (p=0.0149)	-0.8794 (p=0.0002)
Días de lluvia > 1 mm	-0.9627 (p=0.0373)	-0.8687 (p=0.0002)
Días de seco	0.5408 (p=0.4592)	0.8142 (p=0.0013)
Presión	0.2986 (p=0.7014)	0.6432 (p=0.0240)
Temperatura	0.6346 (p=0.3654)	0.8986 (p=0.0001)

Tabla L Valores de actividad de ^7Be y ^{210}Pb en las muestras mensuales de 1997.

MES	ACTIVIDAD ^7Be (mBq/m ³)	ACTIVIDAD ^{210}Pb (mBq/m ³)	CANTIDAD DE LLUVIA (l/m ²)
Enero	3.4 ± 0.4	0.53 ± 0.44	144
Febrero	5.6 ± 0.6	0.67 ± 0.50	0
Marzo	7.8 ± 0.7	0.79 ± 0.50	0
Abril	5.8 ± 0.6	< 0.70	58.3
Mayo	5.7 ± 0.6	< 0.87	44.4
Junio	5.7 ± 0.6	< 0.87	41.6
Julio	6.8 ± 0.6	0.95 ± 0.45	0
Agosto	7.3 ± 0.7	1.47 ± 0.47	31
Septiembre	6.3 ± 1	1.22 ± 0.45	0.1
Octubre	5.1 ± 0.5	< 0.64	67
Noviembre	4.2 ± 0.5	< 0.76	100
Diciembre	3.8 ± 0.8	< 0.81	95

En la tabla siguiente se presentan los coeficientes de correlación y el grado de significación de los valores mensuales de actividad de ^7Be y ^{210}Pb con las variables meteorológicas.

Tabla LL Coeficientes de correlación de los datos mensuales de ^7Be y ^{210}Pb correspondientes a 1997 y las variables meteorológicas.

Variables relacionadas	^{210}Pb (n=6)	^7Be (n=12)
Cantidad lluvia	-0.4152 (p=0.4129)	-0.8674 (p=0.0003)
Tiempo lloviendo	-0.5203 (p=0.2900)	-0.8899 (p=0.0001)
Días de lluvia > 1 mm	-0.4527 (p=0.3674)	-0.8474 (p=0.0005)
Días de seco	0.3131 (p=0.5456)	0.7693 (p=0.0034)
Presión	0.2198 (p=0.6756)	0.4930 (p=0.1034)
Temperatura	0.9091 (p=0.0120)	0.6809 (p=0.0148)

El análisis de la correlación entre las actividades mensuales de los isótopos ^{210}Pb y ^7Be en el período 1995, 1996 y 1997 ha mostrado que:

- * en 1995, año de sequía (INM, 1997), el ^{210}Pb estuvo correlacionado con la temperatura, mientras que el ^7Be estuvo correlacionado con todas las variables estudiadas excepto con la presión. La realización de una regresión múltiple por etapas ha mostrado las siguientes ecuaciones y coeficientes de determinación:

$$A(\text{Pb-210}) = (47 \pm 4) \cdot 10^{-3} t^a \quad R^2=0.9396$$

$$A(\text{Be-7}) = (22 \pm 4) \cdot 10^{-2} t^a + (8 \pm 2) \cdot 10^{-2} \text{dsec.} \quad R^2=0.9849$$

- * en 1996, año excepcionalmente húmedo (INM, 1997), según el INM, la actividad del ^{210}Pb estuvo correlacionada con la cantidad de lluvia y con el tiempo que estuvo lloviendo y la actividad del ^7Be estuvo correlacionada con todas las variables estudiadas. La regresión múltiple por etapas ha mostrado las siguientes ecuaciones y coeficientes de determinación:

$$A(\text{Pb-210}) = (88 \pm 2) \cdot 10^{-2} + (-24 \pm 3) \cdot 10^{-5} \text{tillov.} \quad R^2=0.9556$$

$$A(\text{Be-7}) = (18 \pm 4) \cdot 10^{-2} t^a + (12 \pm 3) \cdot 10^{-2} \text{dsec.} \quad R^2=0.9868$$

- * en 1997, año húmedo (INM, 1997), la actividad del ^{210}Pb estuvo correlacionada con la temperatura y la actividad del ^7Be estuvo correlacionada con todas las variables estudiadas excepto con la presión. La regresión múltiple por etapas ha mostrado las siguientes ecuaciones y coeficientes de determinación:

$$A(\text{Pb-210}) = (54 \pm 4) \cdot 10^{-3} t^a \quad R^2=0.9738$$

$$A(\text{Be-7}) = (23 \pm 1) \cdot 10^{-2} t^a \quad R^2=0.9754$$

siendo: t^a = temperatura

dsec= días sin llover

tillov= tiempo lloviendo.

De acuerdo con los resultados anteriores, en las variaciones de las actividades mensuales de los dos isótopos estudiados se observa la temperatura como la variable más influyente, existiendo en ambos casos un coeficiente de correlación positivo, es decir, a mayor temperatura mayor actividad de estos radionúclidos.

Tabla LII. Valores de la actividad de ^7Be y ^{210}Pb en muestras trimestrales del período 1993/97.

Período	Actividad ^7Be (mBq/m ³)	Actividad ^{210}Pb (mBq/m ³)	Lluvia (l/m ²)
1 ^{er} T.93	3.4 ± 0.4	0.68 ± 0.27	38.8
2 ^o T.93	4.7 ± 0.3	0.53 ± 0.15	97
3 ^{er} T.93	5.3 ± 0.3	0.96 ± 0.23	5
4 ^o T.93	3.4 ± 0.3	0.61 ± 0.18	102.5
1 ^{er} T.94	4.3 ± 0.3	0.54 ± 0.13	96
2 ^o T.94	5.9 ± 0.4	0.66 ± 0.14	58
3 ^{er} T.94	6.4 ± 0.4	0.98 ± 0.16	21
4 ^o T.94	3.5 ± 0.4	0.70 ± 0.15	60
1 ^{er} T.95	3.9 ± 0.3	0.42 ± 0.13	40.5
2 ^o T.95	4.5 ± 0.3	0.41 ± 0.12	28
3 ^{er} T.95	6.8 ± 0.4	1.09 ± 0.20	25.7
4 ^o T.95	4.7 ± 0.4	0.81 ± 0.19	131
1 ^{er} T.96	3.7 ± 0.3	0.21 ± 0.15	297
2 ^o T.96	6.6 ± 0.4	0.50 ± 0.16	120
3 ^{er} T.96	7.1 ± 0.5	0.65 ± 0.23	56
4 ^o T.96	4.3 ± 0.4	0.53 ± 0.16	278.6
1 ^{er} T.97	6.2 ± 0.4	0.44 ± 0.16	144
2 ^o T.97	6.2 ± 0.4	0.42 ± 0.16	144
3 ^{er} T.97	7.5 ± 0.5	0.97 ± 0.18	31
4 ^o T.97	3.7 ± 0.3	0.42 ± 0.14	262

En la tabla siguiente se presentan los coeficientes de correlación y el grado de significación de los valores trimestrales de la actividad de ^7Be y ^{210}Pb con las variables meteorológicas.

Tabla LIII. Coeficientes de correlación de los datos trimestrales de ^7Be y ^{210}Pb correspondientes a 1993-1997 y las variables meteorológicas.

Variables relacionadas	^{210}Pb (n=20)	^7Be (n=20)
Cantidad lluvia	-0.6595 (p=0.0016)	-0.3379 (p=0.1451)
Tiempo lloviendo	-0.6532 (p=0.0018)	-0.4361 (p=0.0546)
Días de secano	0.6634 (p=0.0014)	0.4148 (p=0.0690)
Presión	0.1500 (p=0.5280)	-0.1992 (p=0.3997)
Temperatura	0.6659 (p=0.0014)	0.7751 (p=0.0001)
Días de lluvia	-0.6799 (p=0.0010)	-0.4316 (p=0.0574)
Visibilidad	0.4076 (p=0.0744)	0.7435 (p=0.0002)
^7Be	0.4575 (p=0.0425)	-----

En el período presentado en esta Memoria (1993-1997) se han medido muestras obtenidas en años muy secos (1993-1995) con precipitaciones comprendidas entre 236-312 mm y muestras obtenidas en años muy húmedos (1996-97) con precipitaciones entre 452-623 mm (**Instituto Nacional de Meteorología, 1997**). Con objeto de comparar el comportamiento de dichas muestras se ha analizado por separado la influencia de las variables meteorológicas. Los coeficientes de correlación obtenidos se presentan en la tabla LIV.

Tabla LIV. Coeficientes de correlación entre las actividades trimestrales de ^7Be y ^{210}Pb y las variables meteorológicas y niveles de significación asociados.

Variables meteorológicas	Años secos (n=12)		Años húmedos (n=8)	
	Be-7	Pb-210	Be-7	Pb-210
Lluvia (mm)	-0.4888(0.1069)	-0.3633(0.2457)	-0.9814(0.0000)	-0.7577(0.0294)
Tiempo lloviendo (min)	-0.5305(0.0760)	-0.4749(0.1187)	-0.9881(0.0000)	-0.7367(0.0371)
Días de lluvia > 1mm	-0.3868(0.2142)	-0.4666(0.1262)	-0.9757(0.0000)	-0.7852(0.0210)
Días de secano	0.3162(0.3167)	0.4119(0.1834)	0.9727(0.0000)	0.7885(0.0201)
Presión (hPa)	-0.6380(0.0256)	-0.2464(0.4401)	0.5035(0.2034)	0.4287(0.2892)
Temperatura (°C)	0.8901(0.0001)	0.6638(0.0186)	0.7979(0.0176)	0.8095(0.0149)
Visibilidad (hm)	0.8314(0.0008)	0.3670(0.2406)	0.7059(0.0504)	0.7939(0.0186)
Pb-210	0.6723(0.0166)	---	0.7116(0.0477)	---

En años muy secos la variable que presenta un coeficiente de correlación mayor tanto para el Be-7 como para Pb-210 es la temperatura y la actividad no presenta correlación con la cantidad de lluvia, tiempo que ha estado lloviendo ni con el tiempo que ha estado sin llover. En los años húmedos la actividad si está correlacionada con la cantidad de lluvia y con el tiempo que ha estado lloviendo. Este comportamiento diferente se debe a que en los años secos las precipitaciones se produjeron de forma irregular y con poca duración, por lo tanto en estas muestras queda enmascarado el efecto de lavado y la disminución de la actividad que produce la lluvia, por la acumulación que se produce en ausencia de ésta. (Camacho-García *et al.*, 1997)

La realización de una regresión múltiple por etapas muestra lo anterior para el ^7Be , sin embargo en el ^{210}Pb no se observa dicho comportamiento. A continuación se presentan las ecuaciones y los coeficientes de determinación obtenidos con dicho tratamiento.

*Años secos (n=12)

$$A(\text{Be-7}) = (28 \pm 2) \cdot 10^{-2} \text{ t}^a \quad R^2=0.9601$$

$$A(\text{Pb-210}) = (41 \pm 4) \cdot 10^{-3} \text{ t}^a \quad R^2=0.9227$$

*Años húmedos (n=8)

$$A(\text{Be-7}) = (88 \pm 2) \cdot 10^{-3} \text{ dsec.} + (-13 \pm 2) \cdot 10^{-5} \text{ t}^a \text{ llov.} \quad R^2=0.9978$$

$$A(\text{Pb-210}) = (33 \pm 3) \cdot 10^{-3} \text{ t}^a \quad R^2=0.9522$$

En la figura 27 se presenta la evolución temporal de la actividad trimestral de los radionúclidos ^{210}Pb y ^7Be correspondiente al período 1993-1997.

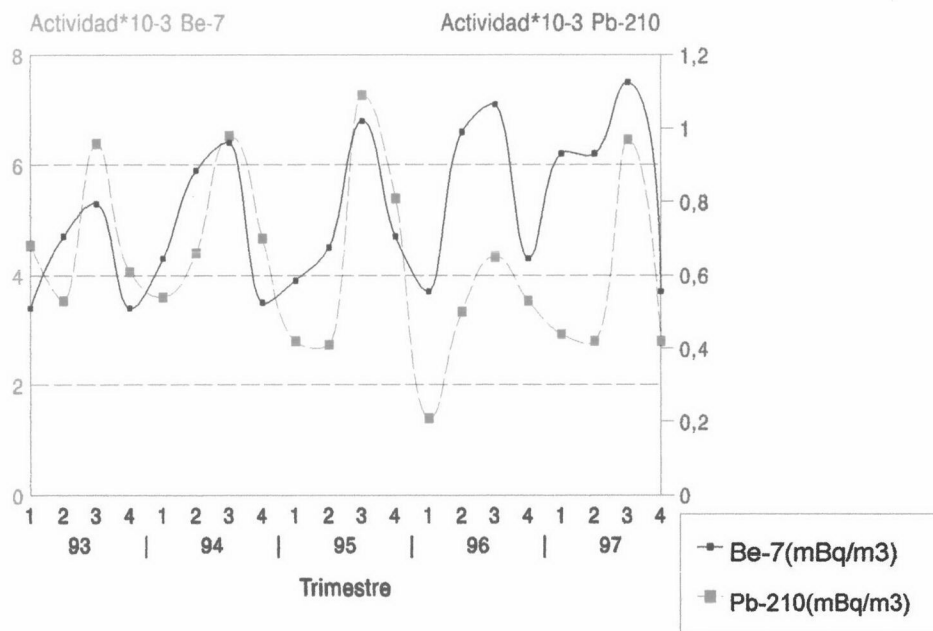


Figura 27. Evolución temporal de la actividad trimestral de los radionúclidos ^{210}Pb y ^7Be .

Respecto a la evolución temporal de estos radionúclidos se observa que ambos presentan máximos en el tercer trimestre, mientras que los mínimos se presentan en el primer y segundo trimestre para el ^{210}Pb y en el primer y cuarto trimestre para el ^7Be .

V.3. AGUA DE LLUVIA

Como ya señalamos en la Introducción la lluvia ejerce un importante papel en el arrastre de los radionúclidos existentes en la atmósfera, como se puede observar en los radioisótopos detectados en este tipo de muestras, fundamentalmente ^7Be y ^{210}Pb .

En la figura 28 se representa la actividad de ^7Be (Bq/m^2) en el agua de lluvia y en muestras de polvo atmosférico, los valores se presentan en la tabla LV.

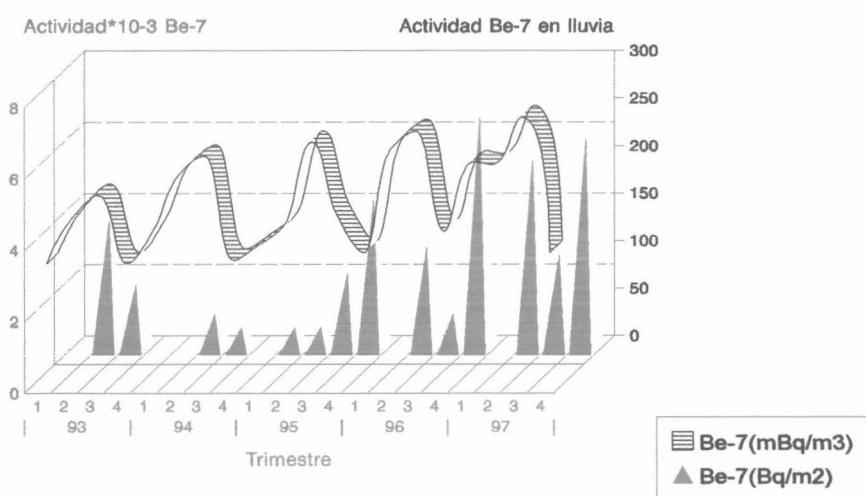


Figura 28. Evolución de la actividad trimestral debida al ^7Be en agua de lluvia y en aerosoles.

Tabla LV. Valores de actividad de ^7Be en muestras trimestrales de agua de lluvia correspondientes al período 1993/97.

Muestra	Actividad \pm Error (Bq/m ³)	Actividad \pm Error (Bq/m ²)	LID (Bq/m ³)	LID (Bq/m ²)
1T.93	< LID	< LID	337	13
2T.93	1470 \pm 420	143 \pm 41	179	17
3T.93	1450 \pm 357	72 \pm 2	194	1
4T.93	< LID	< LID	326	33
1T.94	< LID	< LID	662	63
2T.94	682 \pm 397	40 \pm 23	352	20
3T.94	1180 \pm 470	25 \pm 10	310	6.51
4T.94	< LID	< LID	700	42
1T.95	628 \pm 107	25 \pm 4	490	20
2T.95	937 \pm 370	26 \pm 10	340	9.5
3T.95	3300 \pm 875	85 \pm 22	451	12
4T.95	998 \pm 478	166 \pm 79	524	87
1T.96	< LID	< LID	865	221
2T.96	953 \pm 484	114 \pm 58	479	57
3T.96	705 \pm 475	40 \pm 27	484	27
4T.96	916 \pm 501	256 \pm 140	552	155
1T.97	< LID	< LID	802	100
2T.97	1450 \pm 481	209 \pm 69	488	70
3T.97	1380 \pm 507	105 \pm 39	920	70
4T.97	1000 \pm 510	233 \pm 119	884	206

El radionúclido ^{210}Pb sólo se ha detectado en muestras del tercer trimestre de los años 1993, 1994 y 1995 respectivamente. En la tabla siguiente se presentan las actividades detectadas en tales muestras.

Tabla LVI. Valores de actividad de ^{210}Pb en muestras trimestrales de agua de lluvia correspondientes al período 1993-1997.

Muestra	Actividad $\pm 2\sigma$ (Bq/m^3)	Actividad $\pm 2\sigma$ (Bq/m^2)	LID (Bq/m^3)	LID (Bq/m^2)
3T.93	2910 \pm 1670	14 \pm 4	1290	6
3T.94	2180 \pm 1610	46 \pm 34	1470	31
4T.94	2010 \pm 1790	121 \pm 107	1970	118
3T.95	442 \pm 311	11 \pm 8	396	10

En algunas de estas muestras también se han detectado pequeñas actividades de los radionúclidos artificiales ^{137}Cs y ^{90}Sr . Debido a su largo período de semidesintegración (≈ 30 años), su presencia en la naturaleza es debida a las pruebas y accidentes nucleares ocurridos en los últimos 40 años (Camacho García A., 1994)

El análisis de la correlación existente entre la actividad detectada en muestras de agua de lluvia y ciertas variables meteorológicas, ha mostrado los coeficientes de correlación y grados de significación que se presentan en la tabla siguiente.

Tabla LVII. Coeficientes de correlación entre las actividades trimestrales de ^7Be en agua de lluvia y las variables meteorológicas y niveles de significación asociados.

Variables relacionadas	^7Be en lluvia (Bq/m^3)	^7Be en lluvia (Bq/m^2)
Cantidad lluvia	-0.2338 (p=0.4212)	0.8983 (p=0.0000)
Tiempo lloviendo	-0.2924 (p=0.3104)	0.8398 (p=0.0002)
Días de seco	0.3191 (p=0.2662)	-0.7836 (p=0.0009)
Presión	-0.2419 (p=0.4048)	-0.2772 (p=0.3374)
Temperatura	0.4686 (p=0.0910)	-0.4869 (p=0.0775)
Días de lluvia	-0.3154 (p=0.2720)	0.8072 (p=0.0005)
^7Be en polvo atmosférico	0.3443 (p=0.2280)	-0.3248 (p=0.2572)
^7Be en lluvia/superficie (Bq/m^2)	0.0514 (p=0.8615)	-----

En los resultados anteriores se observa que la actividad por unidad de volumen (Bq/m^3) del agua de lluvia no está correlacionada con ninguna de las variables estudiadas, lo cual puede deberse a que la concentración de radionúclidos varía mucho de unas muestras a otras debido a la diferencia de volumen acumulado cada trimestre. La actividad por unidad de superficie, sí que ha estado correlacionada con la cantidad de lluvia, tiempo que ha estado lloviendo y con los días sin llover. La realización de una regresión múltiple por etapas ha mostrado la siguiente ecuación y coeficiente de determinación:

$$A(\text{Be-7}) = (23.6 \pm 0.5) \text{ Lluvia} + (-5 \pm 2) \cdot 10^{-2} \text{ tllloviendo} \quad R^2=0.9438$$

V.4. AGUA SUBTERRÁNEA

En este tipo de muestras hemos medido el contenido en ^{222}Rn mediante las técnicas de centelleo líquido y espectrometría gamma.

El ^{222}Rn se encuentra en las aguas subterráneas en forma de gas por lo tanto, la toma de muestra y el transporte de las muestras hasta el laboratorio, debe realizarse con cuidado para evitar errores debidos a la pérdida del mismo (**Hightower et al., 1995**). El primer estudio que hemos realizado a este respecto, ha consistido en la comprobación de la posible pérdida del ^{222}Rn en los recipientes empleados para la toma de muestra y el transporte, habiéndose realizado también un estudio del método de toma de muestra.

En todas las muestras medidas mediante centelleo líquido hemos calculado el período de semidesintegración del isótopo, debido a la falta de especificidad de esta técnica en las condiciones de medida. Para ello hemos medido la variación de la actividad con el tiempo como se describirá en el apartado V.4.2.

Hemos realizado la concentración del ^{222}Rn contenido en las aguas usando tolueno como agente extractante (Prichard *et al.*, 1977; Horiuchi *et al.*, 1981; López Peñalver J.J., 1999). También hemos estudiado diversos factores influyentes en la extracción con tolueno del ^{222}Rn disuelto en las aguas. Esta técnica de preconcentración es útil para aquellos manantiales en los que la concentración de ^{222}Rn es baja ya que los resultados obtenidos mostraban errores bastante grandes debido a su baja actividad.

Se han comparado los resultados obtenidos con las técnicas de medida empleadas, centelleo líquido y espectrometría gamma, con objeto de seleccionar la más apropiada para cada muestra.

Por último también se ha realizado un estudio de la variación temporal y espacial de la actividad tanto en fuentes termales como no termales para comparar su comportamiento.

En la tabla siguiente se presenta la población y las características de los diversos manantiales estudiados.

Tabla LVIII. Características de las aguas subterráneas estudiadas.

Muestra	Localidad	Temperatura del agua (°C)	pH	Conductividad
1	La Malahá	22.4-26.9	7.15-7.57	2.44-2.69 mS
2	La Malahá	30.2	7.36	2.45 mS
3	Jayena	16.3-17.2	7.68-8.03	510-716 μ S
4	Arenas del Rey	13.1-17.4	7.64-8.25	288-302 μ S
5	Játar	12.3-12.7	7.92-8.04	281-292 μ S
7	Velez Benaudalla	18.5-18.7	7.12-7.74	446-469 μ S
8	Dúrcal	14.6-14.9	7.0-8.05	373-461 μ S
9	Dúrcal	24.5-24.9	6.89-7.27	719-762 μ S
10	Padul	15.2-15.3	7.29-7.8	382-435 μ S
11	Padul	16.4-16.7	7.38-7.64	447-472 μ S
12	Vélez Benaudalla	18.0-18.4	7.15-7.46	452-464 μ S
13	Colomera	19.6-20.4	7.02-7.48	893-1142 μ S
14	Colomera	17.1-17.7	6.92-7.47	937-1068 μ S
15	Colomera	18.3	7.89	1477 μ S
16	Lanjarón	17.8-18.4	7.51-7.73	518-561 μ S
17	Lanjarón	13.9-16.2	5.76-6.52	560-1880 μ S
18	La Malahá	25.4	7.40	2.35 mS
19	La Malahá	27.8	7.23	2.71 mS
20	Andújar	19-20	7.3	---
21	Andújar	19-20	7.4	---
22	Andújar	19-20	7.4	---
23	Andújar	19-20	7.3	---
24	Andújar	19-20	7.4	---
25	Andújar	19-20	7.3	---

V.4.1. ESTUDIO DEL MÉTODO DE TOMA DE MUESTRA

Una posible fuente de error en las medidas de la concentración de ^{222}Rn en agua es la pérdida del mismo durante la toma de muestra (**Hightower et al., 1995**). Para comprobar si con el método de toma de muestra obteníamos muestras homogéneas, se seleccionó una fuente y se tomaron un total de 16 muestras, 8 en recipientes de polietileno y 8 en recipientes de vidrio. El contraste de la actividad detectada en estas muestras mostró un nivel de significación de $8.3 \cdot 10^{-7}$, lo que nos llevaba a concluir que el método empleado no generaba muestras homogéneas es decir, las muestras presentaban diferencias significativas entre sí. El resultado anterior se justificó por el hecho de que la fuente seleccionada presentaba un caudal muy pequeño que permitía llenar completamente los recipientes de vidrio (50 mL), mientras que para llenar los recipientes de polietileno (1 L) había que transvasar de otro recipiente a éste. Por lo tanto el resultado obtenido indicaba que sí se producía pérdida de ^{222}Rn en el transvase.

Para poder comparar actividades en recipientes llenados del mismo modo, se prepararon dos series de 8 viales utilizando muestras tomadas en los mismos recipientes de polietileno. El contraste de tales actividades con la media obtenida en el resto de las muestras mostró un nivel de significación de 0.0960, lo que significa que el método de toma de muestra producía resultados comparables entre sí, es decir muestras homogéneas o actividades que no difieren entre sí.

Con objeto de comprobar el resultado anterior, se repitió el estudio seleccionando una fuente en la cual el caudal sí permitía llenar del mismo modo ambos tipos de recipientes. El contraste de las actividades detectadas en ambos tipos de recipientes mostró un nivel de significación de 0.1235, lo que significa que el método de toma de muestra producía resultados comparables entre sí.

V.4.2. ESTUDIO DE LA PÉRDIDA DE ^{222}Rn POR DIFUSIÓN A TRAVÉS DEL PLÁSTICO.

En la bibliografía se indica que es aconsejable la medida de ^{222}Rn en viales de vidrio puesto que se observó pérdida de este radionúclido cuando el recipiente empleado era de plástico (Prichard *et al.* 1977; King P.T. 1982). Por el contrario Countess (1978) no observó pérdida de Radón en Marinellis, que son recipientes de polietileno, almacenados durante una semana.

Con objeto de comprobar si se producía pérdida de Rn en los recipientes de polietileno empleados para el transporte de las muestras hasta el laboratorio, se han tomado muestras en diversos manantiales en recipientes de polietileno y de vidrio y se ha comparado la actividad detectada en las muestras preparadas con agua transportada en recipientes de polietileno con la detectada en las muestras preparadas con agua transportada en recipientes de vidrio. Las actividades de los manantiales estudiados estuvieron comprendidas entre 4 y 35 Bq/L. En las figuras 29 a 31 se muestran los resultados correspondientes a muestras transportadas en recipientes de polietileno y de vidrio para tiempos comprendidos entre la toma de muestra y la preparación del vial de 6, 12 y 24 horas respectivamente, habiéndose mantenido las muestras a temperatura ambiente.

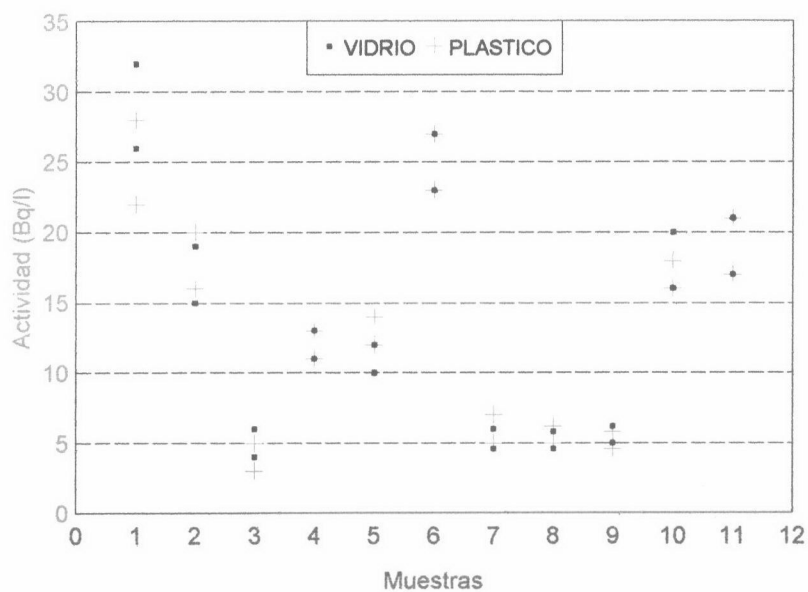


Figura 29. Actividades detectadas en muestras transportadas en recipientes de polietileno y vidrio cuando el tiempo transcurrido desde la toma de muestra es de 6 h.

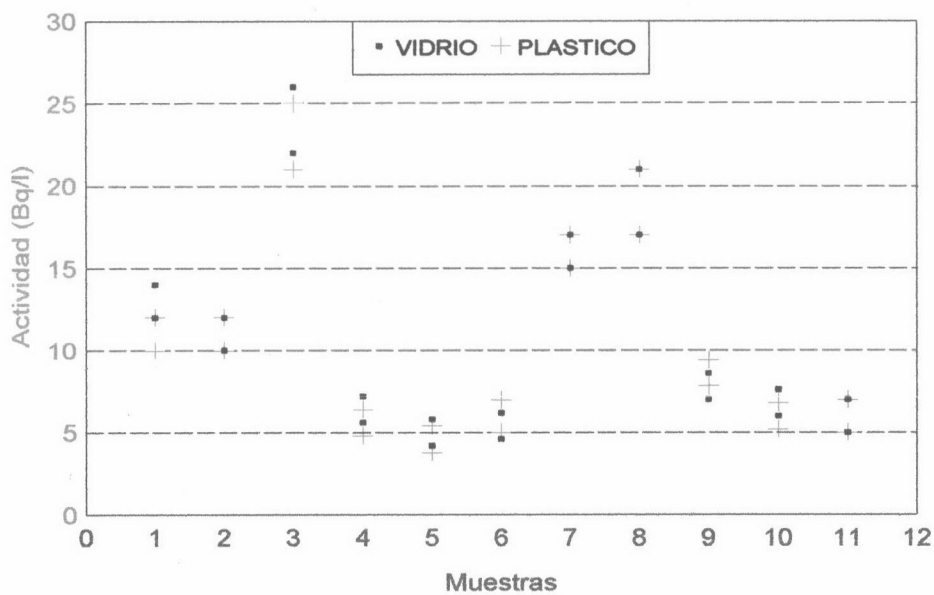


Figura 30. Actividades detectadas en muestras transportadas en recipientes de polietileno y vidrio cuando el tiempo transcurrido desde la toma de muestra es de 12 h.

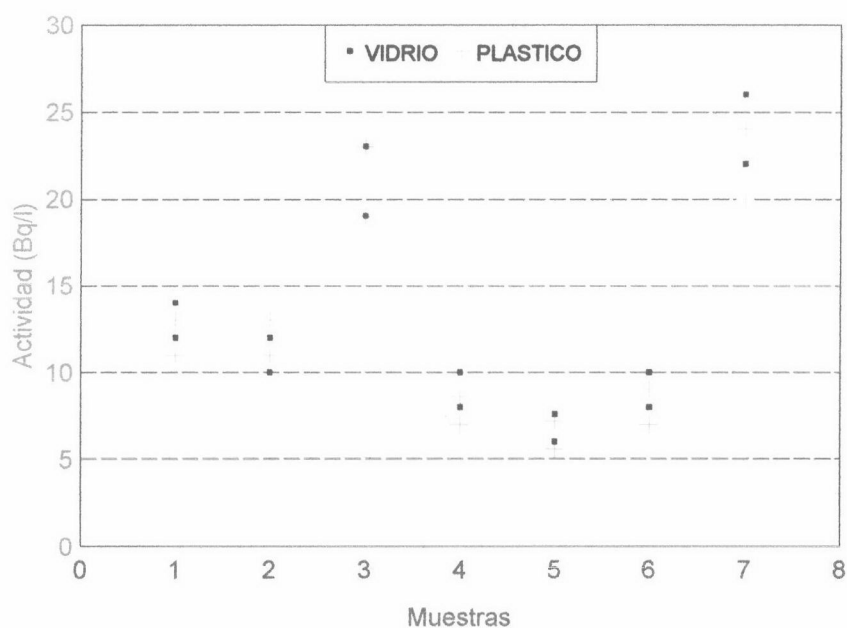


Figura 31. Actividades detectadas en muestras transportadas en recipientes de polietileno y vidrio cuando el tiempo transcurrido desde la toma de muestra es de 24 h.

De la observación de las figuras cabe destacar la concordancia existente entre los datos correspondientes a las muestras transportadas en recipientes de vidrio y las correspondientes a recipientes de plástico, cuando el tiempo transcurrido entre la toma de muestra y la preparación del vial es igual o inferior a 24 horas.

El contraste de las medias de la actividad detectada en función del recipiente utilizado para el transporte de las muestras y del tiempo transcurrido entre la toma de muestra y la medida, mostró los siguientes grados de significación:

Tiempo transcurrido	Grado significación	Número de datos
6 h	0.9607	10
8 h	0.8101	12
12 h	0.8949	11
18 h	0.8244	8
24 h	0.8522	7

Tales grados de significación nos llevan a concluir que no hay diferencias significativas entre la actividad detectada en muestras transportadas en recipientes de polietileno y de vidrio. Por lo tanto según nuestras observaciones no se producen pérdidas importantes de ^{222}Rn por difusión a través del polietileno cuando el tiempo transcurrido entre la toma de muestra y la preparación del vial es de hasta 24 horas, habiéndose mantenido todas las muestras a temperatura ambiente.

Otra experiencia que se ha realizado para comprobar si hay difusión, ha consistido en medir mediante el detector de Germanio intrínseco la variación de la actividad con el tiempo en muestras almacenadas en recipientes tipo Marinelli 1 litro, que son recipientes de polietileno. La representación de la actividad en función del tiempo en escala semilogarítmica conduce a una línea recta a partir de cuya pendiente se puede determinar el período de semidesintegración del isótopo que produce la actividad. Lo anterior se deduce de la ecuación fundamental de la radiactividad:

$$A = A_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t}$$

tomando logaritmos neperianos se obtiene:

$$\ln A = \ln A_0 - \lambda \cdot t$$

teniendo en cuenta que $\lambda = \ln 2 / t_{1/2}$ del valor de la pendiente se obtiene el período de semidesintegración. Para este estudio se utilizó un período de tiempo de 13 días y se obtuvo un valor medio para el período de semidesintegración del ^{222}Rn de 3.30 ± 0.08 días. Este valor al ser comparado mediante el programa informático Statgraphics con el valor tabulado de 3.82 días (Raddecay, 1990) mostró un nivel de significación de $1 \cdot 10^{-3}$ para un nivel de confianza del 95%, que implica que sí difiere significativamente del valor tabulado. Este valor inferior al teórico se justificó por el hecho de que la

disminución de la actividad del ^{222}Rn con el tiempo se debía tanto a la desintegración del ^{222}Rn como a la pérdida por difusión en el plástico o a través de los tapones de los recipientes. Es decir, de esta experiencia se ha obtenido que sí hay alguna pérdida de ^{222}Rn por difusión en el plástico.

A continuación realizamos un cálculo de la actividad que detectaríamos suponiendo que no hay pérdida por difusión sino que sólo hay disminución de la actividad por desintegración ($t_{1/2} = 3.8$ d) y suponiendo que se produce reducción de la actividad tanto por desintegración como por difusión ($t_{1/2} = 3.3$ d) para una actividad inicial de 100 Bq/L y para tiempos transcurridos entre la toma de muestra y la preparación del vial de 6, 8, 12, 18, 24, 48 y 72 horas. Los resultados se muestran en la tabla LIX.

Tabla LIX. Estudio de la pérdida por difusión a través de las paredes de los recipientes de plástico.

Tiempo Transcurrido (h)	Actividad calculada ($t_{1/2} = 3.8$ d)	Actividad observada ($t_{1/2} = 3.3$ d)	% Medido	% Perdido
6	95.54	94.88	99.31	0.69
8	94.10	93.24	99.08	0.92
12	91.28	90.03	98.63	1.37
18	87.21	85.42	97.95	2.05
24	83.33	81.05	97.27	2.72
48	69.43	65.70	94.62	5.38
72	57.86	53.25	92.04	7.96

En esta tabla se observa que cuando el tiempo transcurrido entre la toma de muestra y la preparación del vial para la medida es de 24 horas se ha producido una pérdida por difusión del 2.72 %, que es una cantidad pequeña y que estaría

enmascarada en los errores relativos de los resultados obtenidos mediante centelleo líquido comprendidos entre 2-30 %. De ahí que en el estudio realizado mediante esta técnica no se hayan observado diferencias significativas entre los resultados obtenidos en las muestras transportadas en recipientes de vidrio, que serían herméticos y por lo tanto la reducción de la actividad se debería sólo a la desintegración del ^{222}Rn , y los resultados obtenidos en las muestras transportadas en los recipientes de plástico, en los que se produce difusión y por lo tanto la actividad detectada debería ser menor. Además el ajuste de los tapones de los recipientes de polietileno utilizados para el transporte de las muestras es mejor que el de los recipientes tipo Marinelli al ser los primeros a rosca y los segundos a presión.

En la tabla LIX también se muestra la pérdida producida cuando el tiempo transcurrido entre la toma de muestra y la preparación del vial es de 48 y 72 horas. En este caso las pérdidas llegan a casi un 8 %, las cuales sí serían importantes en muestras que presenten una actividad elevada ya que el error asociado a su actividad es inferior a este valor. Este estudio sirve para cuantificar las pérdidas que se producen cuando el lugar de muestreo está alejado del laboratorio y deban transcurrir varios días antes de la medida de las muestras.

Para intentar solucionar estas pérdidas se repitió la experiencia manteniendo las muestras en frigorífico. Al medir el período de semidesintegración resultó ser de 3.8 días, lo cual nos indica que cuando las muestras se conservan en el frigorífico no se produce difusión, por lo tanto cuando deba transcurrir un tiempo largo entre la toma de muestra y la preparación del vial es aconsejable mantener las muestras a baja temperatura para reducir las pérdidas por difusión. Los resultados de estos estudios se muestran en las figuras 32 y 33.

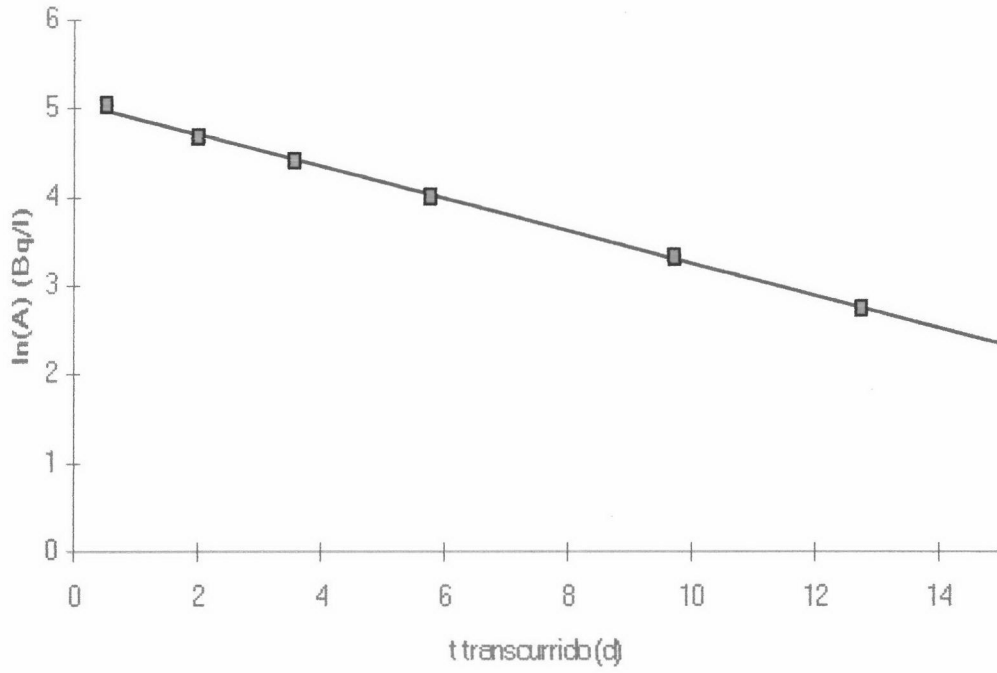


Figura 32. Resultados obtenidos para muestras conservadas en frigorífico.

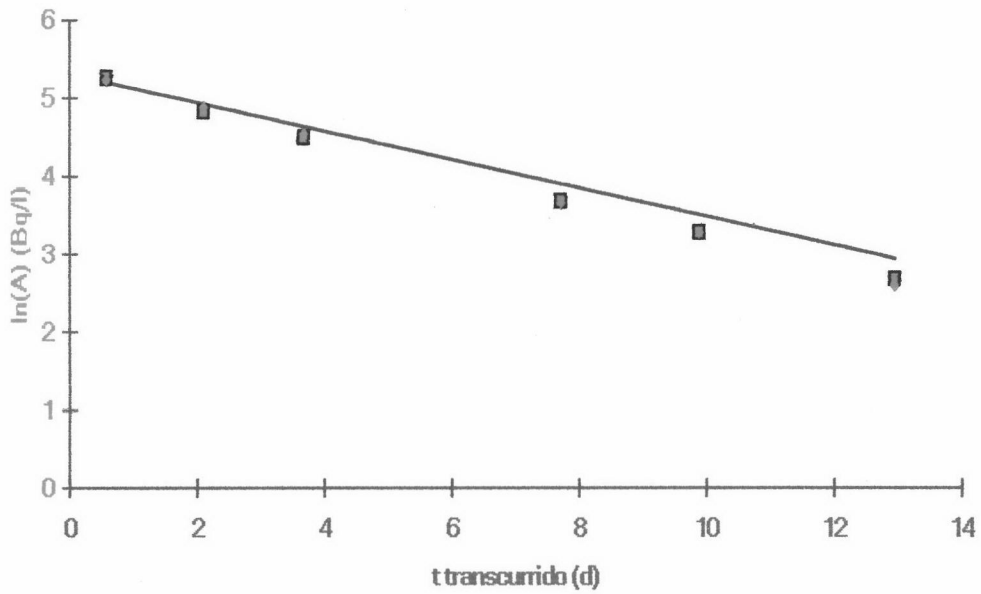


Figura 33. Resultados correspondientes a muestras conservadas a temperatura ambiente.

En las figuras anteriores los puntos representan los valores experimentales y la recta el valor de la actividad teórica que deberíamos detectar para un período de semidesintegración de 3.8 días. Por lo tanto en estas figuras se observa una concordancia perfecta entre la actividad teórica y la experimental en muestras conservadas en frigorífico y un alejamiento en las muestras conservadas a temperatura ambiente.

V.4.3. OPTIMIZACIÓN DE LA EXTRACCIÓN CON TOLUENO

Cuando se obtuvieron los resultados de las primeras muestras se observó que las muestras que tenían poca actividad presentaban una gran dispersión estadística. Esa dispersión hacía que en algunos casos no pudiésemos asegurar que la actividad detectada se debía solo al ^{222}Rn dado que el período de semidesintegración obtenido presentaba un intervalo de valores bastante amplio. Lo anterior nos llevó a plantearnos la posibilidad de tener que concentrar el ^{222}Rn de dichas muestras.

El Radón es muy soluble en tolueno que es un disolvente que se utiliza habitualmente en medidas en las que se emplea centelleo líquido. Por lo tanto, para concentrar el ^{222}Rn contenido en muestras acuosas se puede emplear tolueno como agente extractivo. La relación de los coeficientes de Ostwald para el Radón en tolueno y en agua varía entre 50 a 20 °C y 52 a 30 °C (Prichard *et al.* 1977). Además dado que la solubilidad del Radón en tolueno respecto al aire es de 13,2 a 18 °C ahora ya no es tan importante no dejar aire libre en el recipiente (Darrall *et al.* 1973). La disolución de tolueno contiene como centelladores PPO 4 g/l y POPOP 0,1 g/l (Horiuchi *et al.* 1981).

Para realizar la extracción con tolueno se sacan 50 ml de agua de las botellas

de 1 l, de este volumen 20 ml se emplean para preparar dos viales que usaremos para determinar la actividad de la fase acuosa y para el cálculo del rendimiento de la extracción. A continuación se añaden 50 ml de disolución de tolueno con centelleador, se tapa la botella, se agita y se mantienen en contacto ambas fases durante diferentes intervalos de tiempo. Transcurrido dicho tiempo se extraen 20 ml de tolueno y se adicionan a un vial. La tabla LX muestra los resultados obtenidos en estas condiciones.

Tabla LX. Períodos de semidesintegración obtenidos en las muestras medidas mediante centelleo líquido.

Muestra	Coefficiente Correlación (r)	Período semidesintegración	Muestra	Coefficiente Correlación (r)	Período semidesintegración
T-10	0.9755	4.1±0.5	T-6	0.9452	3.3±0.5
T-10	0.9527	4.2±0.7	T-6 Tol.	0.9918	3.8±0.2
T-10 Tol.	0.9998	3.78±0.03	T-7	0.8814	3±1
T-4	0.9655	4.1±0.6	T-7 Tol.	0.9912	3.9±0.2
T-4	0.9811	4.6±0.5	T-8	0.8794	3±1
T-4 Tol.	0.9984	3.9±0.1	T-8	0.9745	4.4±0.6
T-6	0.9216	3.0±0.9	T-8 Tol.	0.9999	3.81±0.02

En esta tabla se observa como la extracción con tolueno conduce a resultados con menor dispersión estadística que los obtenidos en la fase acuosa.

Para llevar a cabo el proceso de extracción debemos seleccionar las condiciones técnicas más adecuadas. Estas condiciones son: relación de fases, tiempo de agitación, separación de fases y temperatura (Valcárcel Cases *et al.*, 1990). En primer lugar se estudió el porcentaje de ²²²Rn extraído en función del tiempo de contacto entre la fase acuosa y la fase orgánica, para lo cual se dejaron en contacto ambas fases durante tiempos de 6, 8, 12, 18 y 24 horas, para establecer el tiempo óptimo de contacto. En este caso los recipientes se agitaron solo durante

algunos segundos (<30 seg.) sin controlarse el tiempo de agitación. Los resultados se presentan en la figura 27.

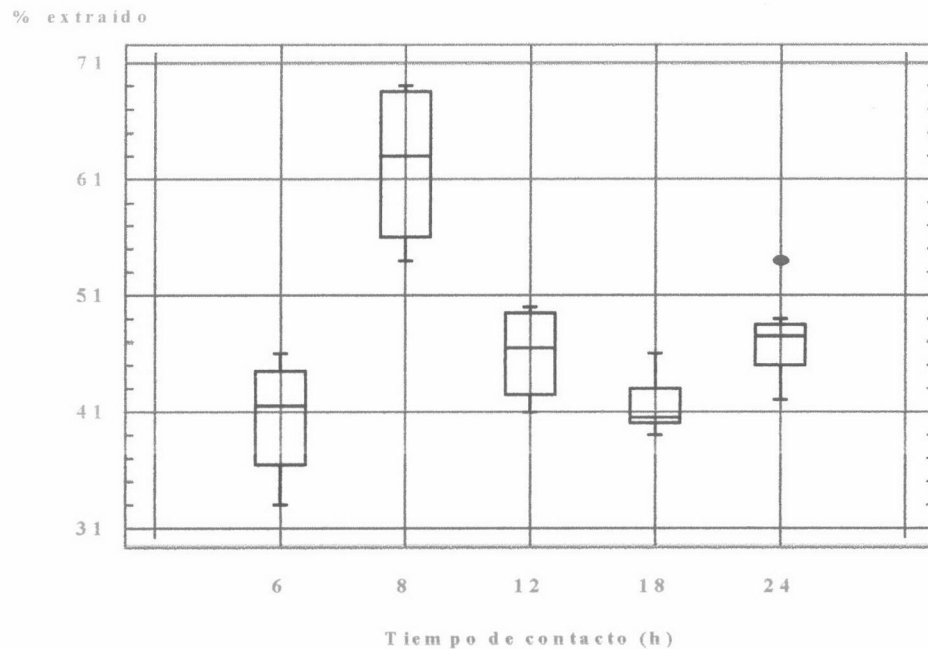


Figura 34. Diagrama de Box and Whisker del porcentaje extraído frente al tiempo de contacto de las fases.

El estudio estadístico del análisis de la varianza del porcentaje extraído en función de diferentes parámetros mostró los grados de significación siguientes:

Parámetros relacionados	Grado de significación
% extraído/Actividad fase acuosa	0.4506
% extraído/tiempo de contacto de las fases	0.0000
% extraído/fecha en la que se realizó el estudio	0.0000

De estos resultados se deduce que el porcentaje extraído no depende de la actividad de la fase acuosa, comprendida en este estudio entre 3-60 Bq/L, pero sí

depende del tiempo de contacto entre las fases y de las condiciones ambientales en las que se realizó la medida. Este estudio mostró la existencia de diferencias significativas entre el porcentaje extraído cuando el tiempo de contacto fue de 8 horas respecto a los demás. También mostró existencia de diferencias significativas entre las muestras preparadas en Octubre del 95 y las demás (Noviembre 95, Enero 96 y Marzo 96). La característica que diferenciaba a las muestras de Octubre 95 de las demás fue una temperatura ambiente mayor (19.4°C frente a 10.2°C). Dado que el coeficiente de distribución depende de la temperatura, este parámetro justificaría el mayor porcentaje obtenido en estas muestras, que fueron también las que se utilizaron para el estudio en el que la fase acuosa y orgánica estuvieron 8 h en contacto.

Cuando se realizó el estudio estadístico sin considerar las muestras de octubre 95 el análisis de la varianza mostró que no había diferencias significativas entre el porcentaje extraído y la fecha en la cual se realizó el estudio ni entre el tiempo de contacto de ambas fases. Bajo estas condiciones, actividad de la fase acuosa comprendida entre 3-60 Bq/L, 50 mL de tolueno y temperatura ambiente de 9.1-10.8 °C, la cantidad extraída fue de $44 \pm 5 \%$ (n=22). De este estudio se deduce que podemos preparar el vial tan pronto se consiga una separación completa de las fases, sin necesidad de controlar este parámetro.

A continuación se estudió el porcentaje extraído en función del tiempo de agitación. Esta variable debe optimizarse empíricamente en cada caso concreto ya que depende del tiempo que tarda el sistema en alcanzar el equilibrio de distribución. Suele oscilar entre 30 segundos y 10-15 minutos, siendo más rápidos los sistemas concentrados (Valcárcel Cases *et al.*, 1990). En la figura 35 se presentan los resultados obtenidos, habiéndose estudiado tiempos de agitación de 5 y 10 minutos.

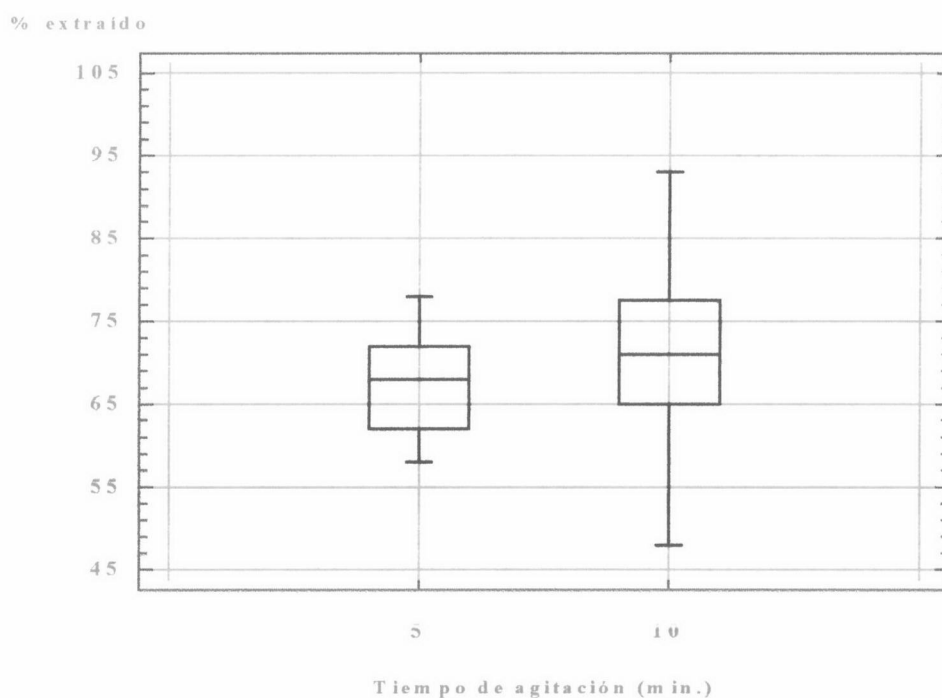


Figura 35. Diagrama de Box and Whisker del % extraído en función del tiempo de agitación.

El análisis de la varianza en función de este parámetro mostró el siguiente grado de significación: $p=0.3846$ ($n=46$), por lo tanto el porcentaje extraído no depende del tiempo de agitación (5-10 minutos). Bajo las condiciones en las cuales se realizó el estudio (actividad de la fase acuosa comprendida entre 5-180 Bq/L y temperatura ambiente entre 11.5-25.9°C) la cantidad extraída ha sido de $70 \pm 9\%$ ($n=46$). En este caso no se controló el tiempo de contacto de ambas fases que fue en todos los casos inferior a 1 hora.

Por último se estudió el volumen de tolueno óptimo para la extracción. Este parámetro se suele denominar relación de fases, que es el cociente entre los volúmenes de fase orgánica y fase acuosa. Este parámetro suele oscilar entre 0.1-0.01 en procesos de concentración de trazas (Valcárcel Cases *et al.*, 1990). Para

este estudio hemos trabajado utilizando volúmenes comprendidos entre 50-100 mL, es decir, con relaciones de fases entre 0.05-0.1. En la figura 36 se presentan los resultados obtenidos, habiéndose realizado el estudio sin controlar el tiempo de separación de las fases, que fue en todos los casos inferior a 1 hora.

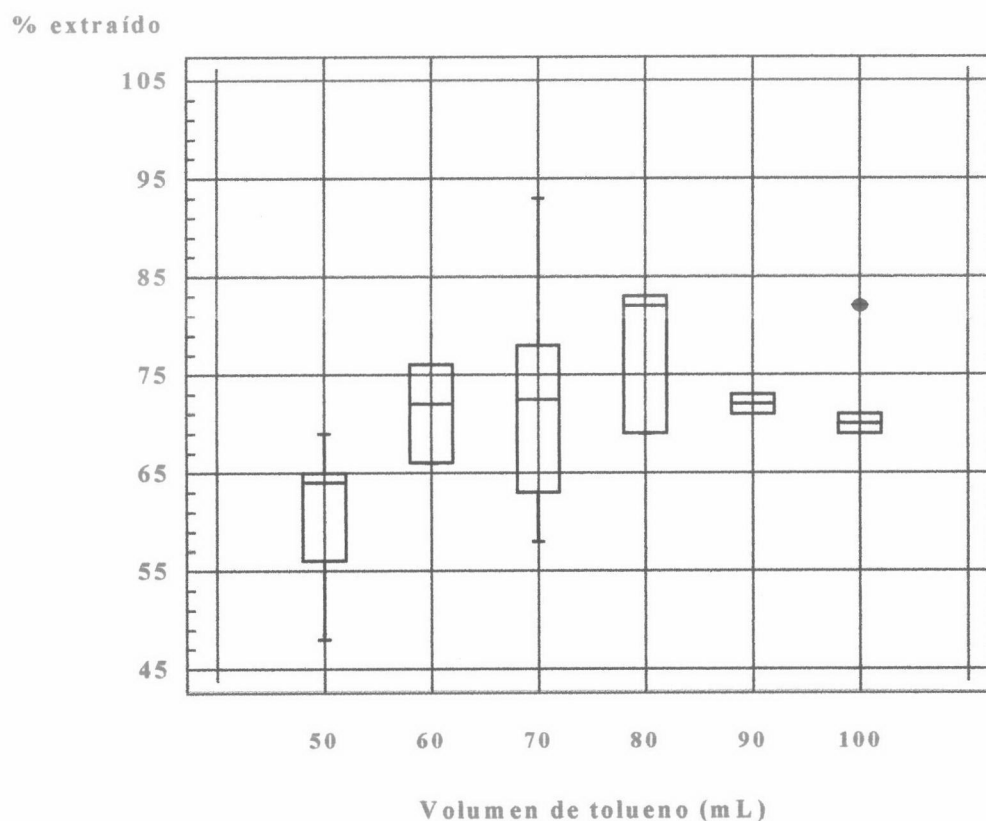


Figura 36. Diagrama de Box and Whisker del % extraído en función del volumen de tolueno utilizado.

El análisis de la varianza mostró un nivel de significación $p=0.0078$ ($n=46$), observándose la existencia de diferencias significativas cuando el volumen utilizado era de 50 mL. Al hacer el tratamiento estadístico sin considerar estos

datos se obtuvo un nivel de significación $p=0.8546$ ($n=35$). Bajo las condiciones en las cuales se realizó el estudio, actividad de la fase acuosa comprendida entre 5-180 Bq/L y temperatura ambiente entre 11.5-25.9°C la cantidad extraída fue de 73 ± 8 % ($n=35$). Este estudio se amplió controlando el tiempo de separación de las fases, siendo en todos los casos superior a 1 h. El resultado obtenido fue un porcentaje extraído de 75 ± 7 % ($n=42$). El contraste de existencia de diferencias significativas entre la cantidad extraída cuando no se controló el tiempo de separación de ambas fases y cuando sí se hizo mostró un nivel de significación de $p=0.2134$, por lo tanto nuevamente se obtuvo que no era importante controlar el tiempo de separación de las fases. Considerando todos los datos la cantidad extraída para actividades de la fase acuosa comprendidas entre 4-320 Bq/L y temperatura ambiente entre 9.1-29.0°C fue de 74 ± 8 % ($n=77$). En la figura 37 se presenta el histograma de frecuencias del porcentaje extraído.

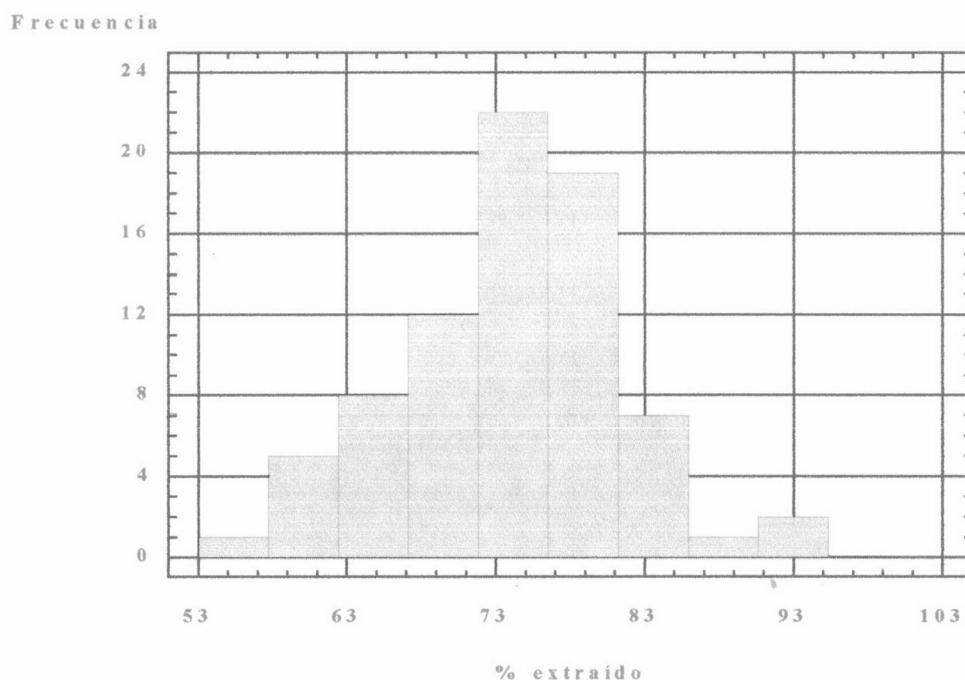


Figura 37. Histograma de frecuencias del porcentaje de ^{222}Rn extraído en tolueno.

V.4.4. CONTENIDO DE ^{222}Rn DE LOS MANANTIALES ESTUDIADOS

A continuación, en las siguientes tablas, se presentan los contenidos en ^{222}Rn de los diferentes manantiales, empleando los dos métodos de medida, centelleo líquido y espectrometría gamma.

Tabla LXI. Contenido en Rn-222 de los manantiales de I.a Malahá.

Muestra	Fecha	Temperatura	pH	Conductividad	Centelleo líquido	Espectrometría gamma
T-1	16/05/95	26.7	7.31	2.65 mS	606 ± 3	---
	06/03/96	---	---	---	485 ± 10	---
	26/03/96	26.0	7.15	2.69 mS	483 ± 27	480 ± 33
	15/10/96	26.9	7.42	2.60 mS	161 ± 22	156 ± 13
	20/11/96	23.5	7.40	2.62 mS	165 ± 7	165 ± 13
	29/12/96	---	---	---	309 ± 4	---
	05/02/97	22.4	7.39	2.62 mS	306 ± 10	271 ± 19
	25/04/97	23.3	7.57	2.44 mS	165 ± 5	161 ± 15
	12/08/97	26.4	7.46	2.49 mS	145 ± 8	142 ± 12
T-2	16/05/95	28.1	7.24	3.17 mS	5.2 ± 0.6	---
	6/03/96	26.9	7.07	3.32 mS	6.7 ± 0.9	---
T-18	15/10/96	25.4	7.40	2.35 mS	15 ± 5	---
T-19	6/03/96	26.4	7.12	2.65 mS	11.8 ± 0.5	11 ± 2
	20/11/96	27.8	7.23	2.71 mS	10 ± 1	11 ± 2
	29/12/96	---	---	---	11.0 ± 0.9	---

Tabla LXII. Contenido en Rn-222 de los manantiales del pantano de Los Bermejales.

Muestra	Fecha	Temperatura	pH	Conductividad	Centelleo líquido	Espectrometría gamma
T-3	30/05/95	17.2	7.68	510 µS	11 ± 2	---
	28/04/97	16.3	8.03	716 µS	5 ± 2	3 ± 2
T-4	30/05/95	17.4	7.64	302 µS	7 ± 1	---
	28/04/97	13.1	8.25	288 µS	6 ± 1	4 ± 2
T-5	28/04/97	12.3	8.04	292 µS	5.5 ± 0.5	5 ± 2

Tabla LXIII. Contenido en Rn-222 de los manantiales del Valle de Ica.

Muestra	Fecha	Temperatura	pH	Conductividad	Centelleo líquido	Espectrometría gamma
T-7	29/11/95	18.5	7.12	446 μ S	14 \pm 1	14 \pm 2
	18/07/96	18.5	7.17	469 μ S	10 \pm 1	10 \pm 2
	25/04/97	18.7	7.74	457 μ S	11.9 \pm 0.9	10 \pm 2
T-8	05/10/95	14.9	7.0	373 μ S	7.5 \pm 0.9	6 \pm 4
	26/03/96	14.6	7.71	382 μ S	6 \pm 2	5 \pm 2
	15/10/96	14.8	8.05	454 μ S	6 \pm 1	6 \pm 1
	20/11/96	14.7	7.85	461 μ S	4.6 \pm 0.6	4 \pm 1
	29/12/96	---	---	---	6.9 \pm 0.6	---
T-9	05/10/95	24.9	6.89	719 μ S	51 \pm 2	53 \pm 8
	29/11/95	24.5	7.27	761 μ S	53 \pm 4	50 \pm 6
	26/02/98	---	---	---	26.8 \pm 0.8	22 \pm 3
T-10	05/10/95	15.3	7.8	382 μ S	7.7 \pm 0.7	6 \pm 3
	26/03/96	15.3	7.29	414 μ S	6 \pm 1	6.0 \pm 0.8
	15/10/96	15.2	7.72	430 μ S	7.8 \pm 0.5	7 \pm 1
	20/11/96	15.2	7.63	435 μ S	7.7 \pm 0.7	7 \pm 1
	29/12/96	---	---	---	7.0 \pm 0.7	---
	26/02/98	---	---	---	7.0 \pm 0.6	7 \pm 1
T-11	05/10/95	16.5	7.28	447 μ S	24 \pm 2	25 \pm 4
	29/11/95	16.4	7.43	461 μ S	25 \pm 2	25 \pm 3
	06/03/96	16.7	7.63	472 μ S	24 \pm 1	25 \pm 2
	29/12/96	---	---	---	30 \pm 1	---
	25/04/97	16.1	7.61	477 μ S	31 \pm 2	29 \pm 2
	26/02/98	---	---	---	23 \pm 2	27 \pm 2
T-12	29/11/95	18.0	7.15	463 μ S	9.8 \pm 0.9	8 \pm 3
	18/07/96	18.4	7.46	464 μ S	6.8 \pm 0.8	---
	25/04/97	18.2	7.41	452 μ S	7.9 \pm 0.8	7 \pm 2
T-16	18/07/96	18.4	7.51	518 μ S	20.6 \pm 0.9	18 \pm 2
	20/11/96	18.1	7.60	545 μ S	22 \pm 2	20 \pm 2
	29/12/96	---	---	---	21 \pm 1	---
	25/04/97	17.9	7.62	561 μ S	22 \pm 1	19 \pm 2
	31/07/97	17.8	7.73	533 μ S	20 \pm 1	19 \pm 3
	26/02/98	---	---	---	21 \pm 1	17 \pm 2
T-17	18/07/96	13.9	6.52	560 μ S	26 \pm 1	27 \pm 2
	31/07/97	16.2	5.76	1880 μ S	31 \pm 2	31 \pm 3
	26/02/98	---	---	---	30 \pm 2	25 \pm 2

Tabla LXIV. Contenido en Rn-222 de los manantiales de Colomera.

Muestra	Fecha	Temperatura	pH	Conductividad	Centelleo líquido	Espectrometría gamma
T-13	31/01/96	19.6	7.02	893 μ S	17 \pm 1	19 \pm 2
	24/04/96	19.7	7.40	1142 μ S	17 \pm 2	14 \pm 2
	04/03/97	20.4	7.48	950 μ S	10.7 \pm 0.3	9 \pm 1
T-14	31/01/96	17.1	6.92	1068 μ S	2.5 \pm 0.3	3 \pm 2
	24/04/96	17.7	7.08	1011 μ S	4.9 \pm 0.9	3.7 \pm 0.6
	04/03/97	17.6	7.47	937 μ S	8.9 \pm 0.7	6 \pm 1
T-15	24/04/96	18.3	7.83	1477 μ S	15 \pm 1	12 \pm 1
	04/03/97	---	---	---	4.7 \pm 0.5	5 \pm 1

Tabla LXV. Contenido en ^{222}Rn de los manantiales del dominio hercínico.

Muestra	Fecha	Centelleo líquido
20	22/01/95	480 \pm 5
	04/02/96	430 \pm 20
21	22/01/95	245 \pm 4
22	22/01/95	210 \pm 2
23	22/01/95	465 \pm 5
24	22/01/95	100 \pm 2
25	22/01/95	1160 \pm 20
	04/02/96	690 \pm 15

Respecto a la variación temporal de la actividad en las muestras del dominio alpino, cabe indicar que las oscilaciones importantes en la misma se han producido en lugares en los que se ha alterado el medio, bien por acción humana como puede ser mediante el sondeo de un pozo en las proximidades del manantial, habiéndose afectado a la alimentación del acuífero (caso T-1), por canalización del agua para almacenarla en balsa (caso T-13) o bien por acción de agentes meteorológicos, como por ejemplo la existencia de lluvias intensas que “contaminaron” el agua del acuífero (caso T-15). También hay que indicar que las aguas termales con actividades menores fueron tomadas al final de una canalización en la cual se

habría producido pérdida de ^{222}Rn que no hemos podido cuantificar por falta de datos. A modo de ejemplo de la pérdida producida en una canalización presentamos las muestras T-7 y T-12 que son muestras del mismo manantial pero una fue tomada en la surgencia y la otra después de unos 20 m de canalización, siendo las actividades detectadas en T-12 un 30% inferiores a las detectadas en T-7.

Las variaciones que presentan las muestras del dominio hercínico se han justificado en función del tipo de pozo en el cual se realizó la toma de muestra, presentando actividades mayores los pozos modernos que son más profundos y atraviesan betas de Uranio que los pozos antiguos que son pozos superficiales.

El estudio de la influencia de la litología muestra actividades mayores en acuíferos del dominio hercínico respecto a los del dominio alpino.

En el apartado siguiente se relacionará la actividad de las aguas con las características de los suelos en los cuales se encuentran las fuentes.

El análisis de la correlación entre el contenido en ^{222}Rn y pH, conductividad y temperatura mostró que éste estaba correlacionado con la conductividad y con la temperatura del agua (Martín-Vallejo M., 1997), siendo los coeficientes de correlación de 0.6417 y 0.5684 respectivamente. En la figura 38 se representa en contenido en ^{222}Rn de las fuentes en función de la temperatura del agua.

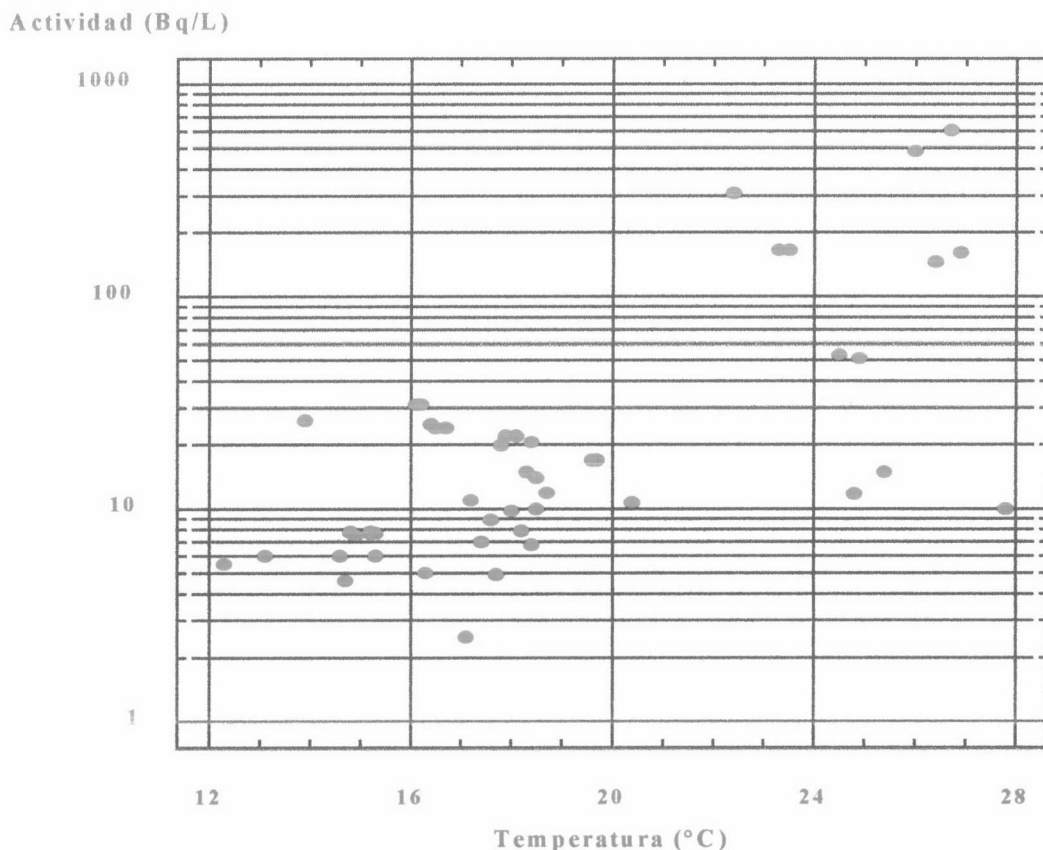


Figura 38. Contenido en ^{222}Rn y temperatura de las aguas de los manantiales.

En cuanto al comportamiento de las fuentes según su termicidad, podemos observar que, de acuerdo con la clasificación térmica de las aguas termales, según el criterio de Cruz-Sanjulián y García-Rossell, así como según el criterio Legislación de Minas, 1967, en la zona estudiada las fuentes termales que serían aquellas de $t^a > 19^\circ\text{C}$, presentan contenidos en ^{222}Rn superiores a 10 Bq/L, mostrando un 47% de las mismas actividades superiores a 100 Bq/L. Un 65% de las muestras pertenecientes al dominio intermedio, es decir, con $16.6 < t^a < 19^\circ\text{C}$, muestran contenidos en $^{222}\text{Rn} > 10$ Bq/L; mientras que las muestras tomadas en fuentes frías, es decir $t^a < 16.5^\circ\text{C}$, sólo un 31% presenta actividades > 10 Bq/L.

V.4.5. SELECCIÓN DE LA TÉCNICA DE MEDIDA DEL ^{222}Rn

El contraste de la actividad detectada en función de la técnica de medida utilizada, mostró un nivel de significación $p=0.9110$, por lo tanto podemos concluir que no hay diferencias significativas entre las técnicas de medida empleadas en el estudio. A la hora de seleccionar la técnica de medida, si tenemos en cuenta el valor del LID, podemos utilizar la técnica de centelleo líquido sin necesidad de preconcentrar en aquellas muestras cuyo contenido en ^{222}Rn sea superior a 3 Bq/L, sin embargo en muestras con actividades inferiores a 10 Bq/L podemos obtener errores relativos de hasta 30%, aconsejándose inicialmente, en estos casos la medida mediante espectrometría gamma. Para comprobar lo anterior en la figura 39 se presenta el error relativo obtenido en el contenido en ^{222}Rn en función de la actividad de la muestra cuando la técnica de medida empleada ha sido la espectrometría gamma.

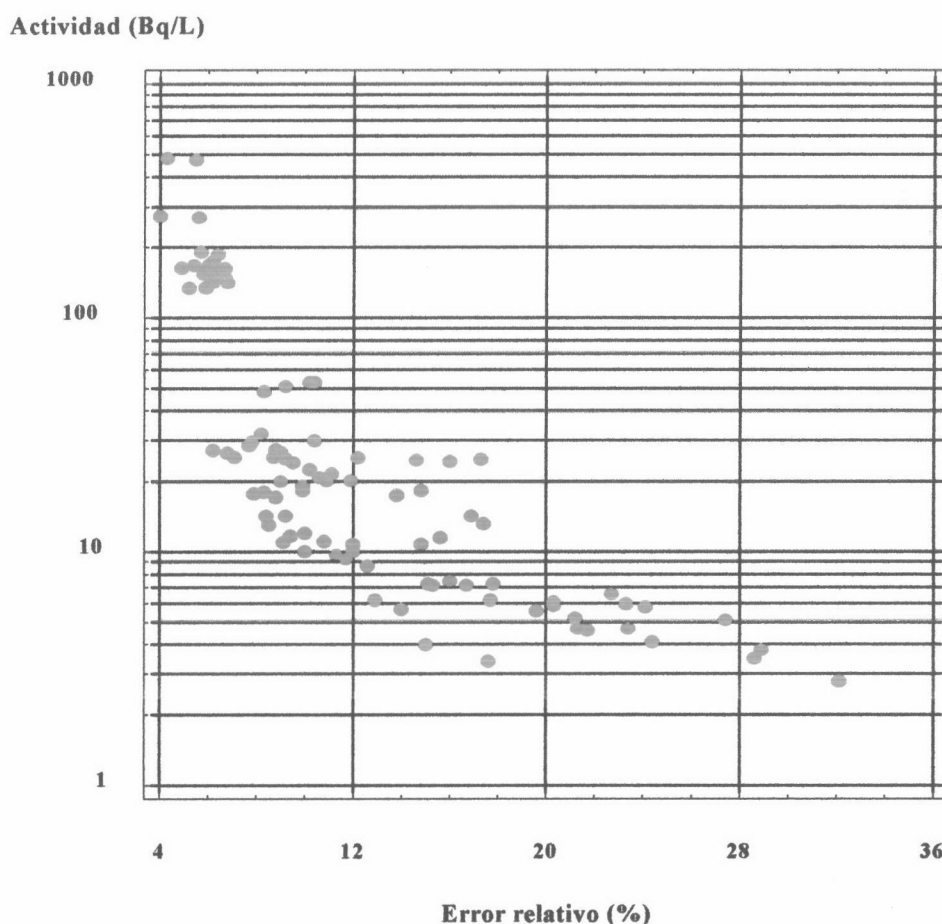


Figura 39. Error relativo en función de la actividad de la muestra empleando la espectrometría gamma.

En la figura anterior se observa que las muestras con $A > 100$ Bq/L han mostrado errores relativos $\approx 6\%$ con tiempos de medida 60-90 minutos y tiempo de *decay* inferior a 48 h. Las muestras con $10 < A < 100$ Bq/L han mostrado errores relativos $\approx 12\%$ con tiempos de medida 180-240 min. y tiempo de *decay* entre 24-48 horas. Las muestras con $5 < A < 10$ Bq/L han mostrado errores relativos $\approx 18\%$ con tiempos de medida comprendidos entre 360-420 min. y tiempo de *decay* inferior a 24 horas, por último, las muestras con $1 < A < 5$ Bq/L han mostrado errores relativos $\approx 25-30\%$ con tiempos de medida comprendidos entre 720-1000 min. y tiempo de

decay inferior a 24 h. De acuerdo con estos resultados la medida mediante espectrometría gamma queda descartada para estas últimas muestras, no solo por el elevado error relativo sino porque sólo podríamos medir 2 muestras cada día. En este caso aconsejamos utilizar la técnica de medida de centelleo líquido con preconcentración mediante tolueno. La utilización de espectrometría gamma se aconseja para muestras con $A > 5$ Bq/L, siempre que el número de muestras a medir permita realizarlo dentro de las 48 h desde la toma de la muestra.

V.5. RADIATIVIDAD DE LOS SUELOS

En este tipo de muestras hemos realizado tanto un estudio espacial como de evolución temporal de la radiactividad. Para el estudio espacial hemos medido los radionúclidos presentes en los suelos próximos a los manantiales estudiados en el apartado anterior, mientras que para el estudio de evolución temporal hemos seleccionado un suelo en el término municipal de Quéntar, como se indicó en el apartado IV.1.5.

V.5.1. ESTUDIO ESPACIAL.

El objetivo de este estudio es relacionar el contenido el ^{222}Rn de los manantiales estudiados en el apartado anterior con las características de los suelos en los cuales se encuentran. A estos suelos les hemos realizado medidas mediante espectrometría gamma, análisis granulométrico, contenido en materia orgánica y humedad. En aquellos manantiales que estaban en la zona de unión de dos suelos diferentes se han medido ambos, y de aquellos que estaban sobre el mismo suelo se han tomado sólo una muestra, lo cual explica la falta de los suelos T-2, 4, 5, 12, 16, 18 y 19. Al suelo T-3 solo se le ha medido los radionúclidos presentes en el mismo debido a que estas

muestras de agua fueron tomadas después de canalización en las cuales al no poder conocer la actividad en la surgencia no tiene sentido relacionarla con un suelo con el cual no está en contacto.

Tabla LXVI. Radionúclidos detectados en suelo T-1 gris.

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD(Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD(Bq/kg)
U-238	Th-234	55±15	Th-232	Ac-228	14±1
	Ra-226	53±4		Pb-212	17±2
	Pb-214	56±4		Bi-212	10±3
	Bi-214	50±2		Tl-208	15±1
	Pb-210	52±8	Artificial	Cs-137	0.3±0.2
U-235	Ra-223	1.9±0.5	Natural	K-40	383±22
	U-235	2.6±0.4			

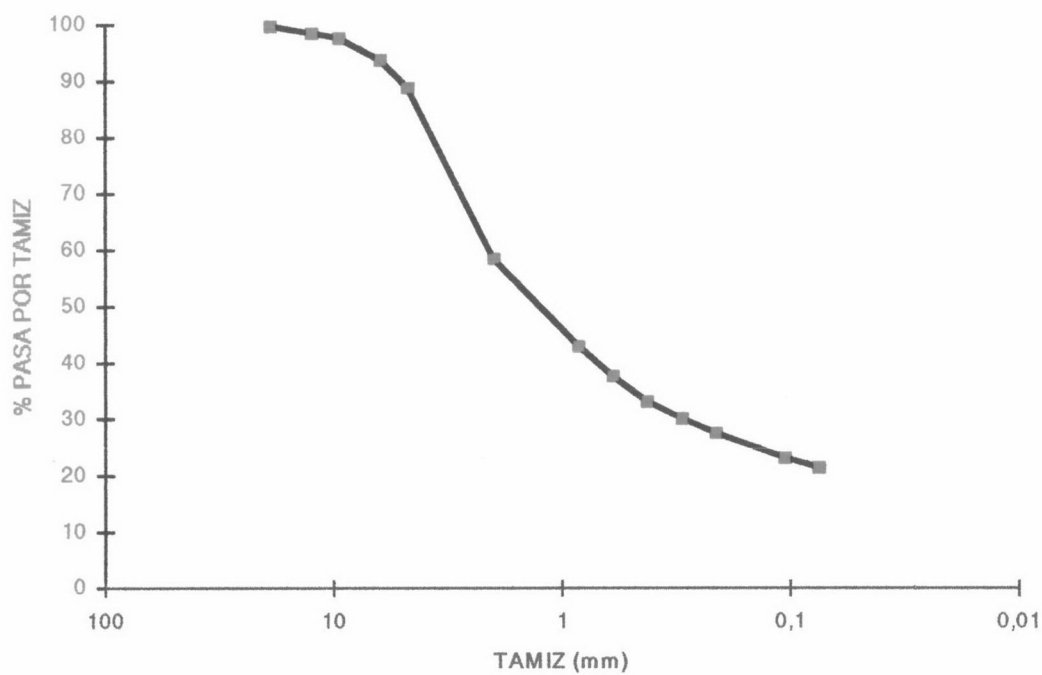


Figura 40. Granulometría del suelo gris del manantial T-1

Tabla LXVII. Radionúclidos detectados en suelo T-1 amarillo.

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD(Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD(Bq/kg)
U-238	Th-234	38±25	Th-232	Ac-228	33±2
	Ra-226	44±4		Pb-212	37±4
	Pb-214	45±4		Bi-212	22±2
	Bi-214	42±2		Tl-208	30±2
	Pb-210	31±7	Artificial	Cs-137	0.6±0.3
U-235	Ra-223	1.5±0.2	Natural	K-40	695±40
	U-235	2.5±0.4			

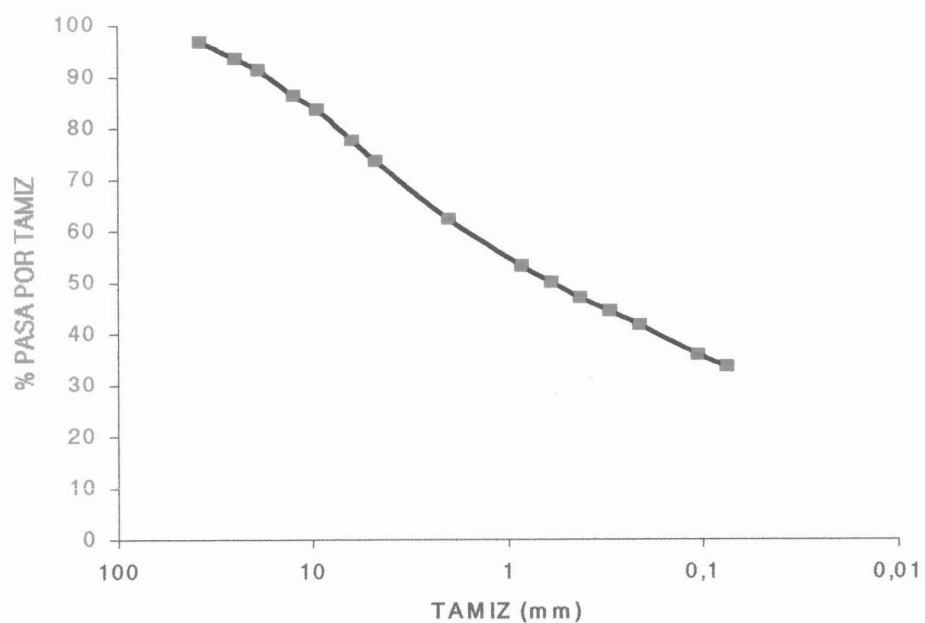


Figura 41. Curva granulométrica del suelo amarillo del manantial T-1.

Tabla LXVIII. Radionúclidos detectados en suelo T-3.

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD(Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD(Bq/kg)
U-238	Ra-226	1744±163	Th-232	Ac-228	31±3
	Pb-214	1868±129		Pb-212	38±4
	Bi-214	1621±102		Bi-212	24±7
	Pb-210	798±104		Tl-208	32±2
U-235	Ra-223	89±21	Artificial	Cs-137	<2
	U-235	58±8	Natural	K-40	311±23

Tabla LXIX. Radionúclidos detectados en suelo T-7.

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD(Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD(Bq/kg)
U-238	Th-234	37±6	Th-232	Ac-228	32±2
	Ra-226	56±4		Pb-212	37±4
	Pb-214	60±4		Bi-212	22±2
	Bi-214	52±2		Tl-208	31±2
	Pb-210	52±12	Artificial	Cs-137	9.7±0.6
U-235	Ra-223	2.0±0.4	Natural	K-40	494±29
	U-235	3.0±0.4			

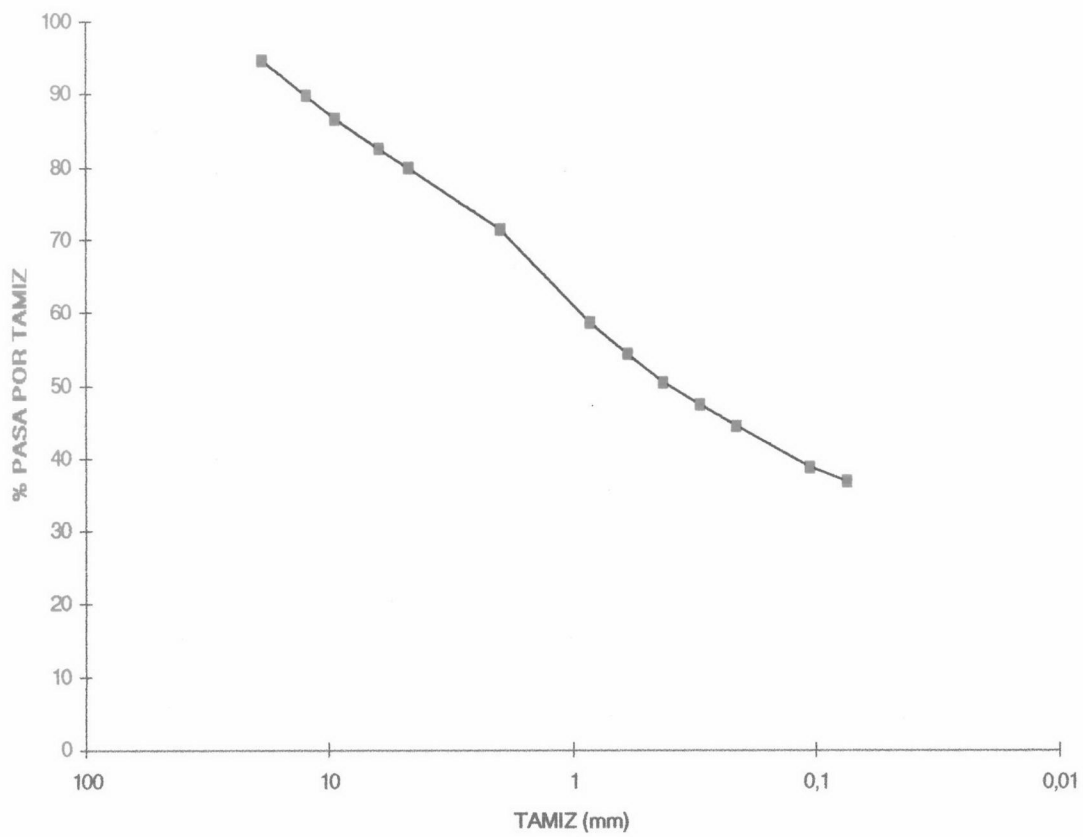


Figura 42. Curva granulométrica del suelo del manantial T-7.

Tabla LXX. Radionúclidos detectados en suelo T-8

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)
U-238	Th-234	53±14	Th-232	Ac-228	20±1
	Ra-226	31±3		Pb-212	23±2
	Pb-214	33±3		Bi-212	14±2
	Bi-214	29±1		Tl-208	19±1
	Pb-210	45±8	Artificial	Cs-137	5.9±0.4
U-235	Ra-223	1.6±0.2	Natural	Be-7	7±3
	U-235	2.5±0.4		K-40	296±18

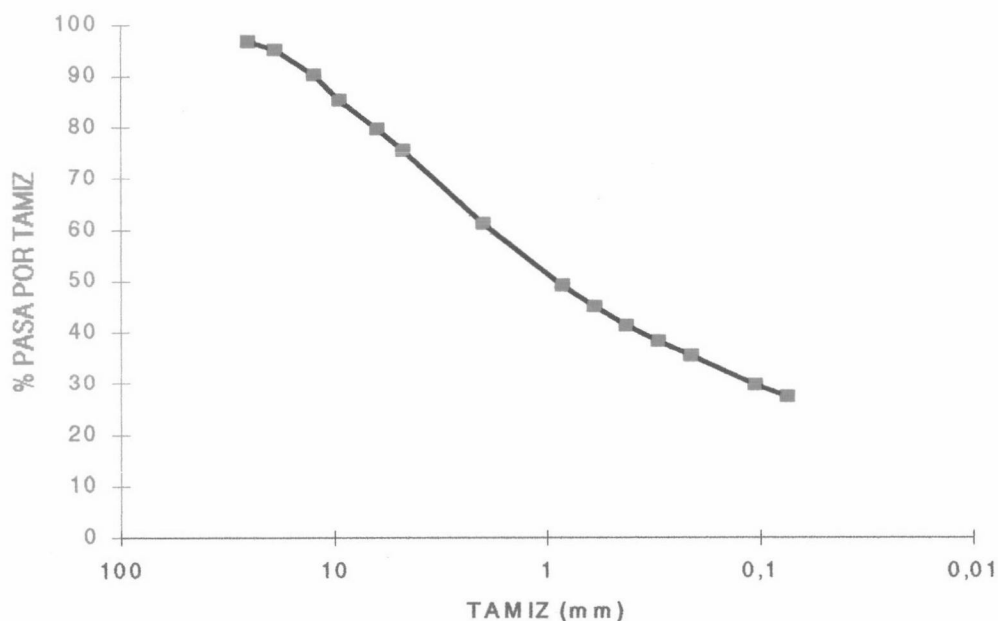


Figura 43. Curva granulométrica del suelo del manantial T-8.

Tabla LXXI. Radionúclidos detectados en suelo T-9

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)
U-238	Th-234	56±16	Th-232	Ac-228	5±1
	Ra-226	97±11		Pb-212	4.6±0.9
	Pb-214	102±10		Bi-212	4±3
	Bi-214	92±5		Tl-208	5±1
	Pb-210	65±13	Artificial	Cs-137	< 0.47
U-235	Ra-223	1.5 ±0.8	Natural	K-40	65±6
	U-235	4±1			

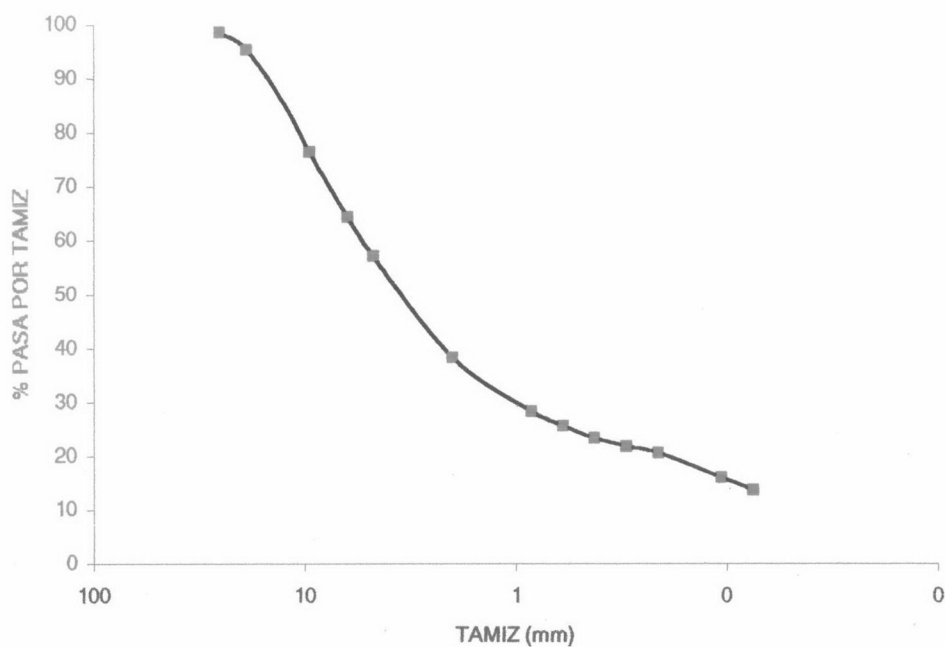


Figura 44. Curva granulométrica del suelo del manantial T-9

Tabla LXII. Radionúclidos detectados en suelo T-10

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)
U-238	Th-234	55±9	Th-232	Ac-228	7.7±0.8
	Ra-226	45±4		Pb-212	8±1
	Pb-214	47±4		Bi-212	5±2
	Bi-214	42±2		Tl-208	6.3±0.6
	Pb-210	43±10	Artificial	Cs-137	7.8±0.4
U-235	Ra-223	2.0±0.4	Natural	K-40	116±8
	U-235	3.0±0.4			

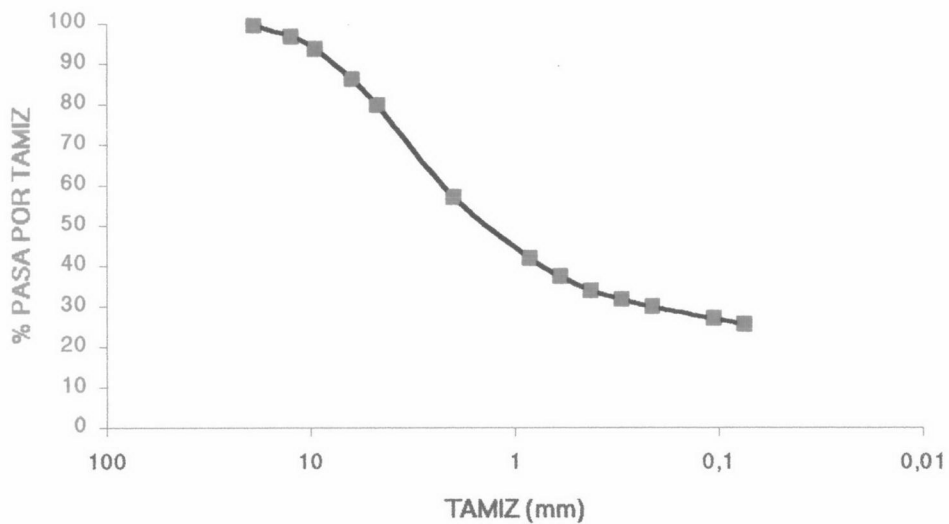


Figura 45. Curva granulométrica del suelo del manantial T-10.

Tabla LXXIII. Radionúclidos detectados en suelo T-11

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)
U-238	Th-234	39±15	Th-232	Ac-228	11±1
	Ra-226	30±4		Pb-212	13±2
	Pb-214	32±4		Bi-212	8±2
	Bi-214	28±2		Tl-208	11±1
	Pb-210	99±18	Artificial	Cs-137	22±1
U-235	Ra-223	1.5±0.5	Natural	Be-7	16±5
	U-235	2.3±0.6		K-40	150±14

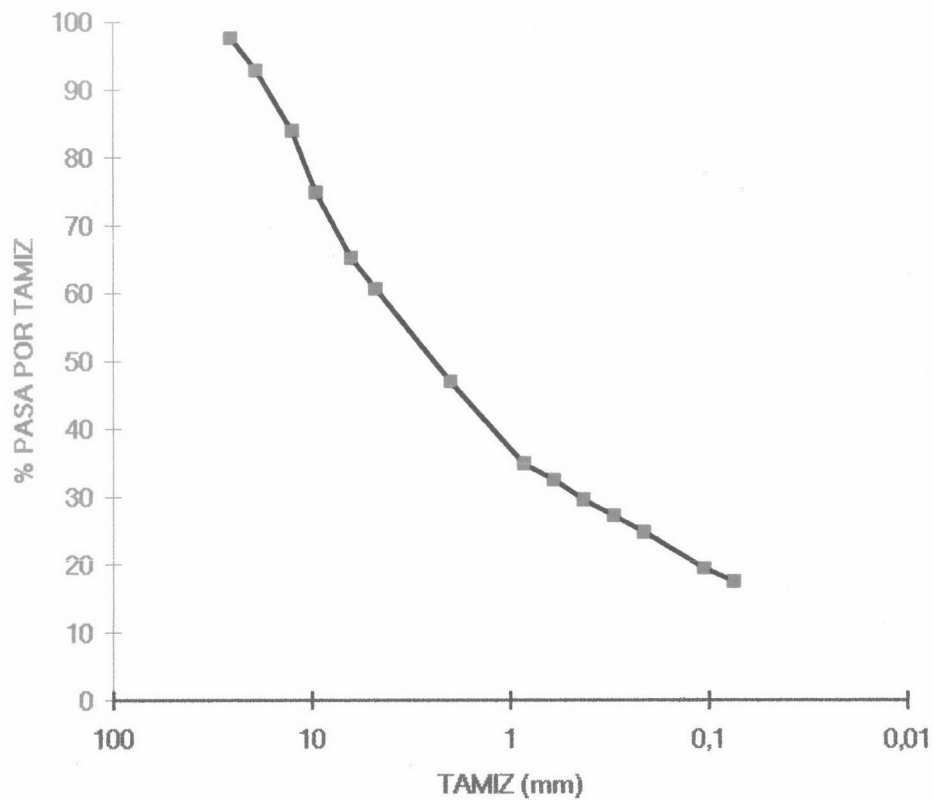


Figura 46. Curva granulométrica del suelo del manantial T-11.

Tabla LXXIV. Radionúclidos detectados en suelo oscuro T-13

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)
U-238	Th-234	44±18	Th-232	Ac-228	20±2
	Ra-226	47±4		Pb-212	23±2
	Pb-214	50±4		Bi-212	13±2
	Bi-214	43±2		Tl-208	18±1
	Pb-210	37±7	Artificial	Cs-137	6.4±0.4
U-235	Ra-223	0.9±0.3	Natural	Be-7	10±4
	U-235	1.8±0.2		K-40	380±22

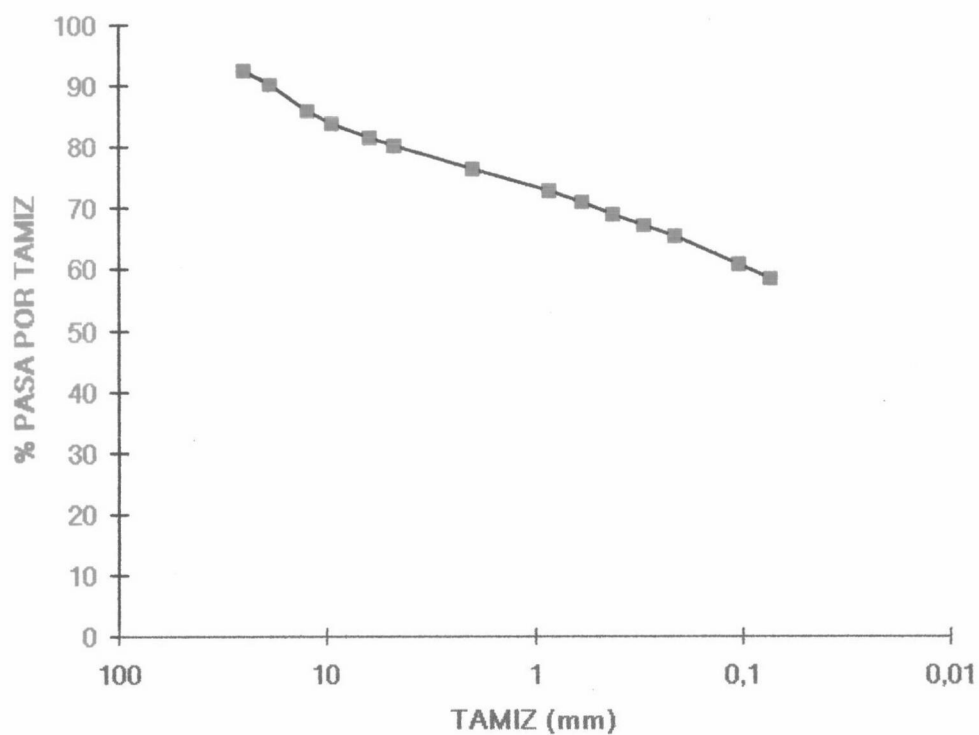


Figura 47. Curva granulométrica del suelo oscuro del manantial T-13.

Tabla LXXV. Radionúclidos detectados en suelo rojo T-13.

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)
U-238	Th-234	30±9	Th-232	Ac-228	14±1
	Ra-226	35±4		Pb-212	18±2
	Pb-214	37±3		Bi-212	10±2
	Bi-214	33±2		Tl-208	15±1
	Pb-210	26±6	Artificial	Cs-137	3.5±0.4
U-235	Ra-223	1.8±0.3	Natural	Be-7	7±3
	U-235	2.3±0.3		K-40	345±20

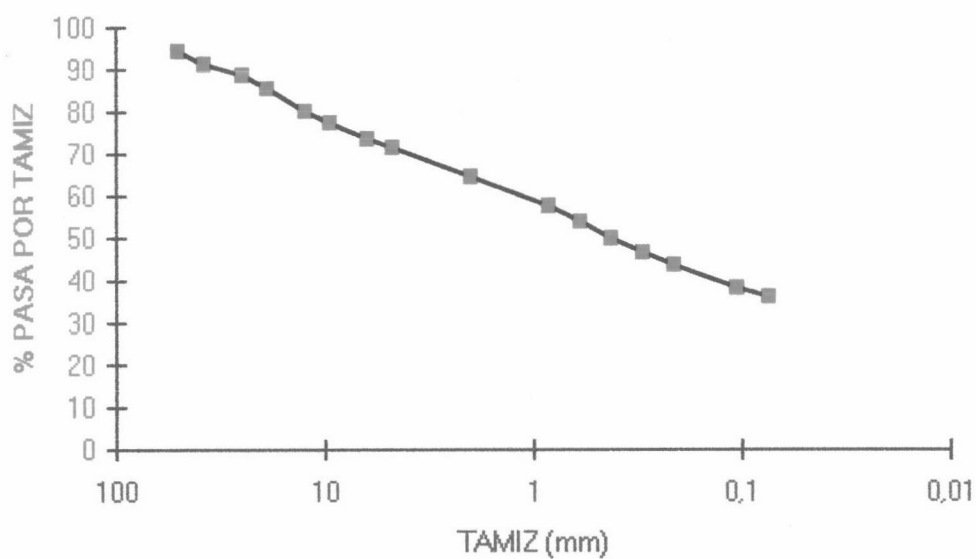


Figura 48. Curva granulométrica del suelo rojo del manantial T-13.

Tabla LXXVI. Radionúclidos detectados en el suelo T-14

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)
U-238	Th-234	16±11	Th-232	Ac-228	15±1
	Ra-226	11±2		Pb-212	16±2
	Pb-214	11±2		Bi-212	10±2
	Bi-214	10.7±0.8		Tl-208	14±1
	Pb-210	16±6	Artificial	Cs-137	2.4±0.4
U-235	Ra-223	1.1±0.4	Natural	K-40	273±17
	U-235	0.7±0.1			

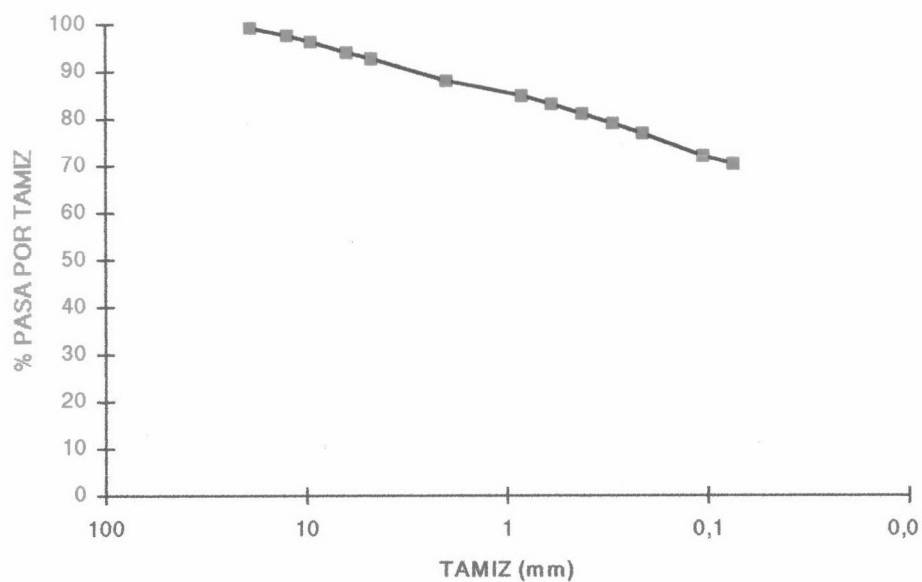


Figura 49. Curva granulométrica del suelo del manantial T-14.

Tabla LXXVII. Radionúclidos detectados en el suelo T-15

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)
U-238	Th-234	33±11	Th-232	Ac-228	20±1
	Ra-226	21±2		Pb-212	24±2
	Pb-214	22±2		Bi-212	12±2
	Bi-214	20±1		Tl-208	20±1
	Pb-210	27±5	Artificial	Cs-137	6.2±0.4
U-235	Ra-223	1.0±0.2	Natural	Be-7	6±2
	U-235	1.5±0.2		K-40	271±16

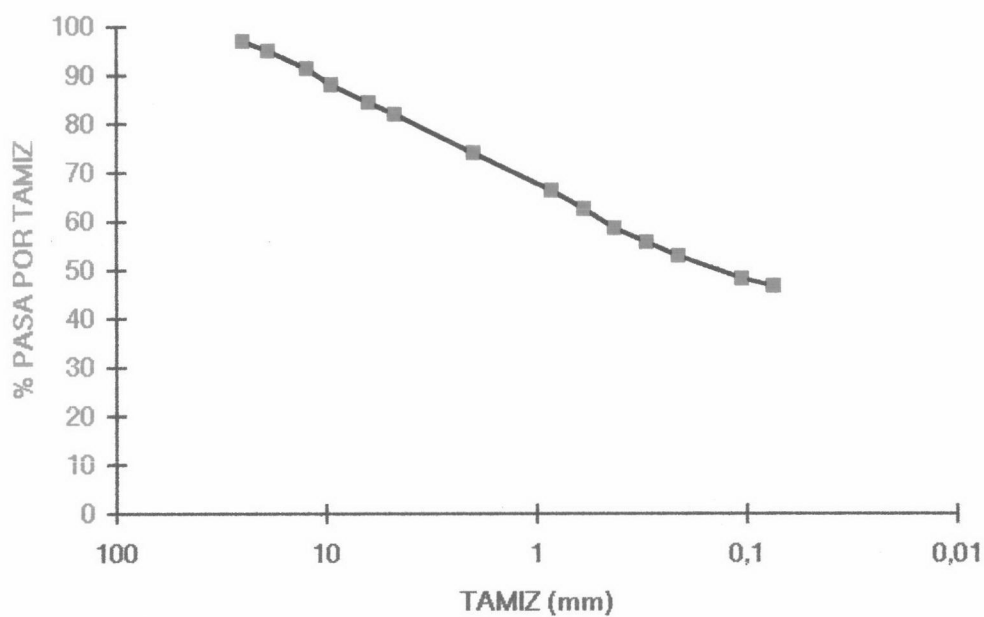


Figura 50. Curva granulométrica del suelo del manantial T-15.

Tabla LXXVIII. Radionúclidos detectados en el suelo T-17

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)
U-238	Th-234	59±16	Th-232	Ac-228	63±3
	Ra-226	44±4		Pb-212	71±7
	Pb-214	46±4		Bi-212	39±3
	Bi-214	41±2		Tl-208	58±3
	Pb-210	38±8	Artificial	Cs-137	0.41±0.24
U-235	Ra-223	2.0±0.2	Natural	K-40	895±51
	U-235	2.5±0.4			

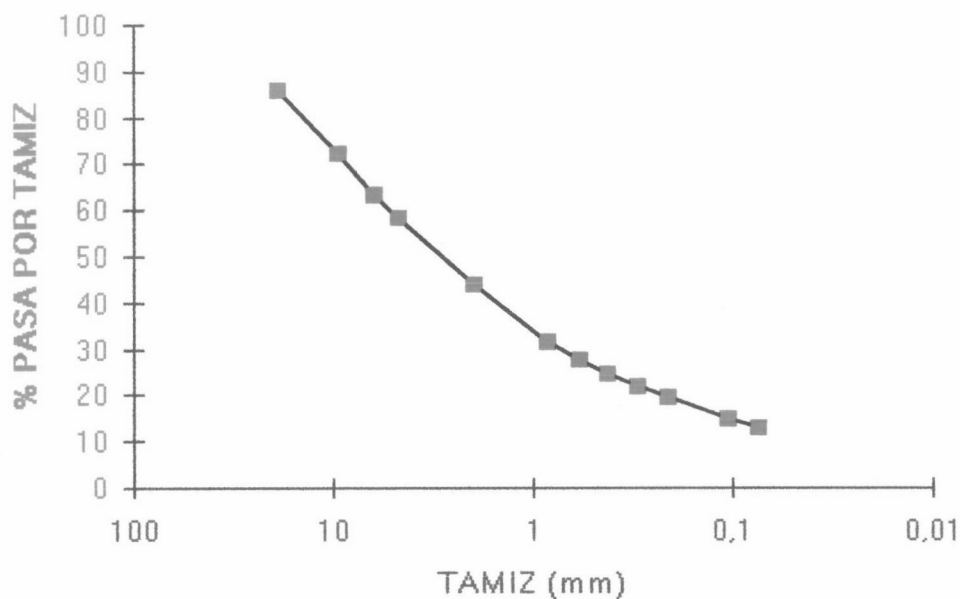


Figura 51. Curva granulométrica del suelo de los manantiales T-16 y T-17.

Tabla LXXIX. Radionúclidos detectados en el suelo T-20

FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)	FAMILIA	ISÓTOPO	ACTIVIDAD (Bq/kg)
U-238	Th-234	155±24	Th-232	Ac-228	78±3
	Ra-226	126±10		Pb-212	89±9
	Pb-214	133±9		Bi-212	53±3
	Bi-214	120±5		Tl-208	76±3
	Pb-210	112±19	Artificial	Cs-137	< 0.67
U-235	Ra-223	5.3±0.6	Natural	K-40	1485±82
	U-235	8.4±1.4			

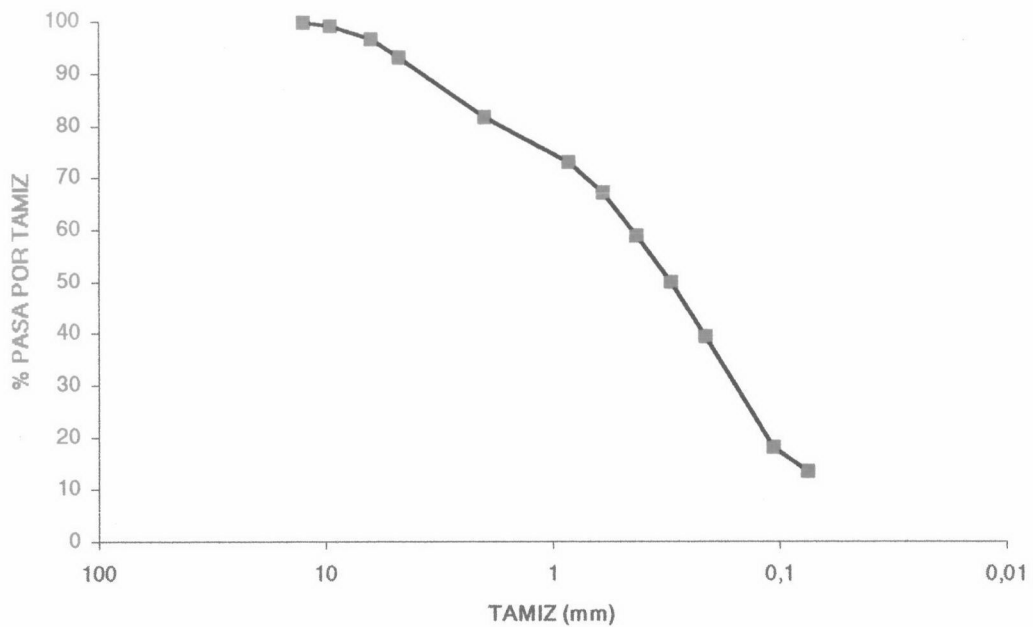


Figura 52. Curva granulométrica del suelo de los manantiales T-20 a T-25.

En la siguiente tabla se presenta el porcentaje en gravas, arenas y limos más arcillas de los suelos anteriores, así como la humedad y el porcentaje de materia orgánica.

Tabla LXXX. Características granulométricas, contenido en materia orgánica y humedad de los suelos estudiados.

Muestra	% Gravas	% Arenas	% Limos+Arcillas	% Materia Orgánica	% Humedad
T-1 g	41.2	36.8	22.0	0.16	1.24
T-1 am.	37.6	28.6	33.8	0.41	0.48
T-7	28.4	34.6	37.0	16.76	2.55
T-8	38.6	33.9	27.5	9.52	1.37
T-9	61.6	24.6	13.7	0.62	0.31
T-10	68.1	19.6	12.3	3.41	0.92
T-11	53.0	29.5	17.5	14.17	2.8
T-13 r.	35.3	28.4	36.3	2.84	2.43
T-13 os.	23.5	17.2	59.3	6.21	3.31
T-14	11.7	17.4	70.9	5.64	1.97
T-15	25.9	27.3	46.8	7.81	5.74
T-17	67.9	19.4	12.7	0.93	0.64

En el análisis de la correlación existente entre el contenido en ^{222}Rn del agua y las características del suelo no se ha encontrado correlación entre ninguna de las variables estudiadas para un nivel de confianza del 95%. Si disminuimos el nivel de confianza se obtienen los siguientes coeficientes de correlación y de determinación:

* Para un nivel de confianza del 85% están relacionados

^{222}Rn y % arenas siendo $r=0.4341$ y $R^2=18.84\%$

^{222}Rn y % materia orgánica siendo $r=-0.4819$ y $R^2=23.23\%$

* Para un nivel de confianza del 70% además de las características anteriores están relacionados

^{222}Rn y ^{226}Ra siendo $r=0.3585$ y $R^2=12.85\%$

^{222}Rn y % humedad siendo $r=-0.3241$ y $R^2=10.5\%$

Utilizando la clasificación de las fuentes según su termicidad, el análisis de la correlación existente entre el contenido en ^{222}Rn del agua y las características de los suelos ha mostrado los siguientes resultados:

* En **fuentes termales** para un nivel de confianza del 80% están relacionados

^{222}Rn y % arenas siendo $r=0.7220$ y $R^2=52.13\%$

^{222}Rn y temperatura del agua siendo $r=0.7506$ y $R^2=56.34\%$

* Para un nivel de confianza del 70% además de las características anteriores están relacionados

^{222}Rn y % humedad siendo $r=-0.5503$ y $R^2=30.29\%$

* En **fuentes intermedias** para un nivel de confianza del 90% están relacionados

^{222}Rn y % gravas siendo $r=0.9157$ y $R^2=83.85\%$

^{222}Rn y limos+arcillas siendo $r=-0.9382$ y $R^2=88.02\%$

* Para un nivel de confianza del 70% además de las características anteriores están relacionados

^{222}Rn y ^{226}Ra siendo $r=0.7013$ y $R^2=49.19\%$

En las **fuentes no termales** no se ha encontrado correlación entre el ^{222}Rn del agua y las características de los suelos estudiados para niveles de confianza superiores al 50%.

V.5.2. ESTUDIO DE UN SUELO DE QUÉNTAR

Para el estudio sobre la evolución temporal hemos utilizado un suelo del término municipal de Quéntar. Desde el punto de vista geológico la zona está situada dentro de los dominios Alpujarride pertenecientes a las denominadas zonas internas de las Cordilleras Béticas (Bética ssrt).

En la tabla LXXXI se presentan los radionúclidos detectados en este suelo durante el período de realización de esta Tesis.

Tabla LXXXI. Radionúclidos detectados en el suelo de Quéntar en el período Dic.92-Oct.97

Familia	Isótopo	Actividad (Bq/kg)/Fecha							
		19/12/92	30/6/93	20/12/93	17/10/94	5/5/95	28/6/96	11/4/97	22/10/97
U-238	Ra-226	90±8	104±10	117±10	118±10	148±13	46±3	102±3	112±13
	Pb-214	93±5	111±8	124±9	125±9	156±11	50±5	107±8	115±8
	Bi-214	87±3	97±4	111±4	111±4	140±6	43±2	100±4	103±4
	Pb-210	227±42	248±46	166±34	263±31	209±32	113±17	181±24	173±21
U-235	U-235	5.2±0.5	5±0.5	5.8±0.6	5.7±0.5	5.0±0.5	±	4.5±0.5	4.8±0.5
Th-232	Ac-228	31±2	56±3	58±3	53±2	54±3	33±3	42±2	43±2
	Pb-212	35±4	64±6	69±7	61±6	65±6	40±4	49±5	50±5
	Bi-212	19±2	34±3	39±3	36±4	39±5	25±5	27±2	28±3
	Tl-208	11.1±0.6	19.6±0.9	57±3	51±2	54±3	32±2	40±2	41±2
Artificial	Cs-137	124±4	116±3	85±3	97±3	95±3	25±1	79±3	94±3
Naturales	Sr-90	11.9±0.3	19.9±0.9	22±4	19.2±0.6	20±0.5	10.4±0.6	18.2±0.7	11.1±0.9
	K-40	642±36	713±41	743±42	1010±56	996±57	426±28	764±43	744±42
	Be-7	<LID	17±4	<LID	8±4	4±3	9±4	<LID	20±4

En cuanto a la evolución temporal de la radiactividad de este suelo, no hemos observado variaciones importantes en los radionúclidos detectados ya que las oscilaciones se deben a modificaciones en el proceso de tratamiento de la

muestra. Así la primera muestra se secó y no se calcinó por lo tanto, se midió con la materia orgánica, mientras que las cuatro muestras siguientes se calcinaron a 500 °C. En la muestra del 28/06/96 se utilizó una geometría diferente, y en las dos últimas muestras se midió la fracción inferior a 2 mm, mientras que en todas las anteriores se midió la fracción inferior a 0.25 mm. Todo lo expuesto anteriormente nos lleva a concluir que hemos de fijar la técnica de preparación de la muestra para poder detectar posibles variaciones en los radionúclidos.



CAPÍTULO VI: CONCLUSIONES

Como resumen de lo expuesto en esta Tesis podemos presentar las siguientes conclusiones:

- 1- Para la aplicación de la técnica de espectrometría gamma se ha realizado una calibración en energías y otra en eficiencias. También se ha determinado la radiación de fondo que llega al detector. El estudio estadístico de esta radiación para cada geometría de las utilizadas ha mostrado que la radiación de fondo que llega al detector para la geometría cartucho es mayor que la que llega para las demás geometrías. Esto se ha atribuido al relleno de carbón activo que presenta esta geometría, debido probablemente al mayor contenido en radionúclidos naturales.
- 2- Se ha puesto a punto un espectrómetro de centelleo líquido para la medida de ^{222}Rn en agua, obteniéndose que la ventana de trabajo presenta una posición óptima de los discriminadores inferior y superior de 15 y 300 respectivamente; que la eficiencia del detector en estas condiciones ha sido $90\pm 5\%$ ($n=468$) y que el Límite de Cuantificación en la ventana del Radón ha sido de 3-3.2 Bq/L.
- 3- Se ha estudiado la calidad radiológica del aire de la ciudad de Granada mediante la determinación de ^{131}I y radionúclidos emisores gamma tanto naturales como artificiales. La actividad del ^{131}I en las 260 muestras medidas siempre ha sido inferior al límite inferior de detección (LID). Este LID es del orden $4\cdot 10^{-4}\text{Bq/m}^3$, por lo tanto podemos concluir que durante el período estudiado (1993-1997) no han existido en el lugar de la toma de muestra, concentraciones detectables de este radionúclido en el aire. Durante el

período de realización de esta Tesis no se ha detectado ningún radionúclido artificial emisor gamma en las muestras atmosféricas medidas, no obstante, sí se han detectado los radionúclidos naturales ^7Be y ^{210}Pb .

- 4- Se ha determinado la concentración semanal del radionúclido cosmogénico ^7Be , encontrándose que los valores medidos siguen una distribución Normal, siendo el valor representativo del conjunto $(5.6 \pm 1.9) \cdot 10^{-3} \text{Bq/m}^3$ ($n=132$). Este valor está en el rango de los referidos en la bibliografía para localidades de latitud similar a la de Granada ciudad. La evolución temporal del radionúclido ^7Be en muestras atmosféricas ha mostrado valores máximos en verano y mínimos en otoño e invierno, como corresponde a una zona de latitudes medias, según lo descrito en la bibliografía. Por otra parte el estudio de las variables meteorológicas que influyen en las variaciones en el contenido en ^7Be en las muestras semanales ha mostrado que tales variables son la temperatura y el peso por unidad de volumen para los datos de 1995 y 1996, mientras que son el peso por unidad de volumen y el tiempo que ha estado sin llover en los datos de 1997.
- 5- En las muestras trimestrales de agua de lluvia hemos detectado ^7Be , encontrándose que la actividad por unidad de superficie, es decir, la actividad depositada por la lluvia depende de la cantidad de lluvia y del tiempo que ha estado lloviendo. Este último factor presenta un coeficiente negativo.
- 6- En las variaciones mensuales de las actividades de ^7Be y ^{210}Pb se observa la temperatura como la variable más influyente. En las variaciones trimestrales de la actividad en muestras atmosféricas, se observa un comportamiento diferente en las muestras obtenidas en años secos y en años húmedos. En años secos (1993-95) la actividad está correlacionada con la temperatura y no lo está con la lluvia, mientras que en años húmedos (1996-97) la actividad sí ha estado correlacionada con la cantidad de lluvia y con el tiempo que ha estado lloviendo. Este comportamiento se debe a que en los años secos las precipitaciones se produjeron de forma irregular y con poca duración, por lo

tanto en estas muestras queda enmascarado el efecto de lavado y la disminución de la actividad que produce la lluvia por la acumulación que se produce en ausencia de ésta.

- 7- Se ha estudiado el contenido en ^{222}Rn de 19 acuíferos de la provincia de Granada y 6 de la provincia de Jaén, encontrándose en todos ellos actividades superiores al LID para este radionúclido.
- 8- En el estudio de los recipientes utilizados para la toma de muestra no se ha observado pérdida de ^{222}Rn por difusión a través del plástico o de los tapones cuando el tiempo transcurrido entre la toma de muestra y la preparación del vial estuvo comprendida entre 6 y 24 horas, sin embargo cuando la temperatura ambiente sea elevada y deban transcurrir más de 24 horas entre la toma de muestra y su medida se reduce este efecto manteniendo las muestras en frigorífico.
- 9- Para muestras de poca actividad debida al ^{222}Rn , se ha puesto a punto un método de preconcentración mediante tolueno, obteniéndose que las condiciones óptimas para ello son: 5 minutos de agitación y volumen de tolueno entre 60-100 mL. En estas condiciones el porcentaje de ^{222}Rn extraído de 1 L de muestra ha sido $74\pm 8\%$ ($n=77$).
- 10- Se ha observado en el contenido en ^{222}Rn de un agua la influencia del dominio geológico en el cual se encuentra el manantial, así las muestras tomadas en el dominio Hercínico han mostrado actividades superiores a las detectadas en muestras tomadas en el dominio Alpino. En las muestras del dominio Hercínico se observa influencia del tipo de pozo en el contenido en ^{222}Rn , así las muestras tomadas en pozos modernos que son más profundos y que atraviesan vetas de Uranio están más enriquecidas en este radionúclido que las muestras obtenidas en pozos antiguos más superficiales. En las muestras del dominio Alpino el contenido en ^{222}Rn mostró estar correlacionado con la temperatura y con la conductividad del agua. Los suelos del dominio Alpino presentan unos contenidos en las familias radiactivas naturales inferiores a los que presentan los suelos hercínicos.

No obstante, los lignitos de Arenas del Rey próximos al pantano de los Bermejales presentaron contenidos en los radionúclidos de las familias ^{238}U y ^{235}U superiores a los de los suelos hercínicos. El análisis de la correlación existente entre el contenido en ^{222}Rn del agua y las características del suelo, ha mostrado relación de éste con el contenido de arenas y en materia orgánica para un nivel de confianza del 85%.

- 11- Los contenidos en ^{222}Rn obtenidos mediante las dos técnicas de medida, centelleo líquido y espectrometría gamma, no han mostrado existencia de diferencias significativas entre sí; aconsejándose la medida mediante espectrometría gamma para muestras con actividades superiores a 5 Bq/L, siempre que el número de muestras a medir permita realizarlo dentro de las 48 h desde la toma de muestra, de no ser así, se aconseja la medida mediante centelleo líquido con preconcentración mediante tolueno.
- 12- El estudio temporal de la radiactividad del suelo de Quéntar del que hemos realizado medidas del mismo lugar a lo largo del período Dic.92-Dic.97 no ha mostrado variaciones importantes en los radionúclidos naturales ni artificiales.

CAPÍTULO VII: BIBLIOGRAFIA

BIBLIOGRAFÍA

AL-DARGAZELLI S.S. (1987) Bismuth Radionuclides in the Natural Background Gamma Radiation Spectrum *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* **116** (1) 3-12.

ANDREWS J. N. and WOOD D. F. (1972) Mechanism of radon release in rock matrices and entry into groundwaters. *Trans. Inst. Mineral. Metall. Sec.* **B81** 198-209.

ARMIJO-VALENZUELA M. and SAN MARTIN J (1994) Radiactividad en las aguas mineromedicinales. Radonterapia In *Curas balnearias y climáticas. Talasoterapia y Helioterapia*. **Cap. 22**. Madrid. Ed. Complutense.

ARNDT R. H. and KURODA P. K. (1953) Radioactivity of rivers and lakes in parts of Garland and Hot Springs Counties, Arkansas. *Econ. Geol.* **48** 551-567.

ARNOLD R.J. and ALI AL-SALIH H. (1955) Beryllium-7 Produced by Cosmic Rays. *Science*. **121** 451-453

ASIKAINEN M. and KAHLOS H. (1979) Anomalously high concentration of uranium, radium and radon in water from drilled wells in the Helsinki region. *Geochim. Cosmochim. Acta* **43** 1681-1686.

ASIKAINEN M. (1981) State of disequilibrium between U-238, U-234, Ra-226 and Rn-222 in groundwater from bedrock. *Geochim. Cosmochim. Acta* **45** 201-206.

ASTUDILLO PASTOR J.; MORENO GUTIERREZ A.; PEREZ LOPEZ J.A. (1985) Determinación de Radón en aguas naturales. Su importancia en la prospección hidrogeoquímica. *Química e Industria* **1.6** 425-28.

BAEZA A.; DEL RIO M.; MIRÓ C.; PANIAGUA J.M.; MORENO A and NAVARRO E. (1988) Radiocesium concentration in migratory birds wintering in Spain after Chernobyl accident. *Health Phys.* **55** (6) 863-67.

BAEZA A.; DEL RIO M.; MIRÓ C.; PANIAGUA J. (1993) Surface and depth fallout distribution of ^{137}Cs and ^{90}Sr in soils of Cáceres (Spain). Dose commitments due to external irradiation. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **175**, 297-316.

BAEZA A.; DEL RIO M.; JIMENEZ A; MIRÓ C.; PANIAGUA J.M. and RUFO M. (1996) Analysis of the Temporal Evolution of Atmospheric Be-7 as a Vector of the Behavior of Other Radionuclides in the Atmosphere. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, **207** (2), 331-344.

BARKER F. B. and SCOTT R. C. (1958) Uranium and Radium in the ground water of the Llano Estacado, Texas and New Mexico. *Am. Geophys. Union Trans.* **39** 459-466.

BARNETT J.M. and McKLVEEN J.W. (1992) The Measurement of ^{222}Rn in Drinking Water by Low-level Liquid Scintillation Counting *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*

161(2) 357-64.

BARRACHINA GÓMEZ M; CERROLAZA ASENJO J.A.; GARCÍA ALONSO J.M.; IRANZO MARTÍN J.E.; LÓPEZ PÉREZ B; MÍNGEZ TORRES E; PASCUALENA CAMBRA M.T.; DE LA POZA GALIANO A.; SECADES ARIZ I. (1993) El riesgo en la producción de electricidad. In *222 Cuestiones sobre la energía*. (ed. Forum Atómico Español) **Cap. 12.** 187, 195-196.

BELLONI P.; CAVAIOLI M.; INGRAO G; MANCINI C.; NOTARO M. and VASSELLI R. (1995) Optimization and Comparison of Three Different Methods for the Determination of Rn-222 in Water *The Sci. Total Environ.* **173/174** 61-67.

BENIOFF P.A. (1956) Cosmic-ray production rate and mean removal time of Beryllium-7 from the atmosphere *Phys. Rev.* **104** 1122.

BERRAD F.; CAMACHO-GARCÍA A.; GARCÍA-ROSSELL L.; GONZÁLEZ-GÓMEZ C. (1996) Medida de Cesio-137 en suelo para sus correlaciones con procesos de erosión y sedimentación en zonas de badlands de la provincia de Almería *Proc. 22 Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española*. Santander, Oct. 1996 173-75.

BIANCOTTO R; LAFISCA S; LUCCHESI R; MARTINELLI C; PREDICATORI F; ROSA M; TACCONI A. and TROTTI F. (1991) Radon concentration in mineral and thermal waters of Veneto: an estimate of ingestion and inhalation doses. *Radiat. Protec. Dos.* **36 (2/4)** 129-135.

BLEICHRODT J.F. (1978) Mean Tropospheric Residence Time of Cosmic-Ray Produced Beryllium-7 at North Temperate Latitudes. *J. Geophys. Res.* **83C6** 3058-62.

BOE nº 255 (1972) Reglamento sobre Instalaciones Nucleares y Radiactivas. *24 de Octubre de 1972*.

BOE nº 100 (1980) Ley 15/1980 de creación del Consejo de Seguridad Nuclear. *25 de Abril de 1980*.

BOE nº226 (1990) Reglamentación Técnico-Sanitaria para el abastecimiento y control de calidad de las aguas potables de consumo público. *20 de Septiembre de 1990*.

BOE nº37 (1992) Reglamento sobre Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes *12 de Febrero de 1992*.

BONDIETTI E.A.; HOFFMAN F.O. and LARSEN I.L. (1984) Air-to-vegetation transfer rates of natural submicron aerosols. *J. Environ. Radioactivity* **1** 5-27.

BONDIETTI E.A.; PAPASTEFANOU C. and RANGARAJAN C. (1987) Aerodynamic size association of natural radioactivity with ambient aerosols. In: *Radon and its Decay Products: Occurrence, Properties and Health Effects*. **ACS Symposium Series 331** ed.

- P.K. Hopke, Am. Chem. Society, Washington, DC 377-397.
- BROWN L.I.; STENSLAND G.J.; KLEIN J and MIDDLETON R. (1988) Atmospheric deposition of ^7Be and ^{10}Be *Geochim. Cosmochim. Acta* **53** 135-142.
- CAMACHO-GARCÍA A. (1994) Vigilancia de la Radiactividad Ambiental *Tesina de Licenciatura*. Univ. de Granada.
- CAMACHO-GARCÍA A.; MARTÍN-VALLEJO M.; GARCÍA-ROSSELL L.; GONZÁLEZ-GÓMEZ C.; MARTÍN-RAMOS D. (1996a) Contenido en Radón de Aguas Subterráneas en regiones Hercínicas y Alpinas de España Meridional. *Proc. 22 Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española*. Santander, Oct. 1996 171-172.
- CAMACHO-GARCÍA A.; GARCÍA-ROSSELL L.; GONZÁLEZ-GÓMEZ C. (1996b) Anomalies de la teneur en Rn dues a des materiaux charboneux dans les bassins neogenes ses consequences sur l'amenagement du territoire. Rabat, Dic. 1996.
- CAMACHO-GARCÍA A.; GONZÁLEZ-GÓMEZ C. and GARCÍA-ROSSELL L. (1997) Relación entre la Radiactividad atmosférica natural de Granada y las variables meteorológicas. *Proc. 23 Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española*. La Coruña, Nov. 1997 39-40.
- CHEREJI I. (1992) ^{222}Rn (^{226}Ra) Determination in Water by Scintillation Methods *J. Radioanal. Nucl. Chem. Let.* **165** (4) 263-267.
- CHOPPIN G; LILJENZIN J.O. and RYDBERG J. (1995) Radionuclides in Nature. In *Radiochemistry and Nuclear Chemistry* (ed. BH) **Cap. 5**
- C.I.E.M.A.T. (1987) Procedimientos de determinación de emisores gamma en muestras ambientales. Comunicación personal.
- CIGNA A.A.; ROSSI L.C.; SGORBINI S. and ZURLINI G. (1987) Environmental study of fallout plutonium in soils from the Piemonte Region (North-West Italy) *J. Environ. Radioactivity* **5** 71-78.
- COBERTERA E. (1993) Análisis de las características orgánicas In: *Edafología aplicada*. Ed. Cátedra.
- COUNTESS R. J. (1978) Measurements of ^{222}Rn in Water. *Health Phys.* **34** 390-391.
- CRUIKSHANK A.J.; COWPER G. and GRUMMIT W.E. (1956) Production of ^7Be in the atmosphere *Can. J. Chem.* **34** 215-19.
- C.S.N. (1986) Informe resumen de la fase inmediata del accidente de la Central Nuclear de Chernobyl y su impacto radiológico en España *CSN/DT/INF-03/86*.

- C.S.N. (1988a) Procedimientos para la recogida de muestras ambientales *CSN/CTR/DSPA/REVIRA00/8806/3*
- C.S.N. (1988b) Relación de métodos analíticos que se aplican en la medida de muestras ambientales *CSN/CTR/DSPA/REVIRA00/8806/2*
- C.S.N. (1988c) Relación de los métodos analíticos utilizados por distintos laboratorios en la realización de medidas ambientales *CSN/CTR/DSPA/REVIRA00/8802/1*
- C.S.N. (1991) La Radiación y tú. *Ed. Consejo de Seguridad Nuclear, Madrid.*
- C.S.N. (1992a) La Vigilancia de la Radiación. *Ed. Consejo de Seguridad Nuclear, Madrid.*
- C.S.N. (1992b) Dosis de Radiación. *Ed. Consejo de Seguridad Nuclear, Madrid.*
- CURRIE L.A. (1968) Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination: Application to Radiochemistry. *Anal. Che.* **40(3)** 586-593.
- DANALI S.; MARGOMENOU G and VELDEKI K. (1986) The Radioactivity of spas on the Greek Island Ikaria and influencing factors. *Health Phys.* **50(4)** 509-513.
- DANALI-COTSAKI S. and MARGOMENOU-LEONIDOPOULOU G (1993) Rn-222 in Greek spa waters: correlation with rainfall and seismic activities. *Health Phys.* **64(6)** 605-612.
- DARRALL K. G., RICHARDSON P. J. and TYLER J. F. C. (1973) An Emanation Method for Determining Radium Using Liquid Scintillation Counting. *Analyst* **98** 610-615.
- DAVID A. and POINTET T. (1996) Influence des paramètres hydroclimatologiques sur les déplacements verticaux du Radon-222 en zone non-saturée *Exploitation Gestion Surveillance des Ressources en Eau* 2791.
- DAVIS SN. and R. DE WIEST (1971) Los radionúclidos en el agua subterránea In *Hidrogeología*. Ed. Ariel **Cap. 5** 185-187.
- DE CORT M. and TSATUROV Y.S. (1996) Atlas on caesium contamination of Europe after the Chernobyl nuclear plant accident.
- DIBB J.E. (1990) Beryllium-7 and Lead-210 in the atmosphere and surface snow over the Greenland ice sheet in the summer of 1989. *J. Geophys. Res.* **95D13** 22407-22415.
- DIBB J.E.; MEEKER L.D.; FINKEL R.C.; SOUTHON J.R.; CAFFEE M.W. and BARRIE L.A. (1994) Estimation of stratospheric input to the Arctic troposphere: ⁷Be and ¹⁰Be in aerosols at Alert, Canada *J. Geophys. Res.* **99D6** 12855-64.

- DOMINICI G. and RISPOSI L.(1995) Misure di radioattività ambientale Ispra 1993 *Report EUR 16124 IT*
- DUEÑAS C; PÉREZ M; FERNÁNDEZ M.C. and CARRETERO J. (1994) Disequilibrium of radon and its short-lived daughters near the ground with atmospheric stability *J. Geophys. Res.* **99D6** 12865-72.
- DUTKIEWICZ V.A. and HUSAIN L. (1979) Determination of stratospheric ozone at ground level using ⁷Be/ozone ratios *Geophys. Res. Lett.* **6** 171-74.
- DUTKIEWICZ V. A. and HUSAIN L. (1985) Stratospheric and Tropospheric components of ⁷Be in Surface Air. *J. Geophys. Res.* **90D3** 5783-5788.
- EML Procedures Manual (formerly HASL-300) (1982) Environmental Measurements Laboratory U.S. Department of Energy, New York.
- ENGELMANN R.J. (1968) The calculation of precipitation scavenging. *USAEC Report TID-24190* Meteorology and Atomic Energy, ed. D.H. Slade 208-221.
- FEELY H.W.; LARSEN R.J. and SANDERSON C.G. (1989) Factors That Cause Seasonal Variations in Beryllium-7 Concentrations in Surface Air. *J. Environ. Radioactivity* **9** 223-249.
- FERNANDEZ P.L.; QUINDOS L.S.; SOTO J. and VILLAR E. (1985) Determinación del contenido de Radio en tierras utilizando una cadena de espectrometría gamma *Anales Fis. Serie B* **81** 44-49.
- FERRERO J.L.; JORDÁ M.L.; MILIÓ J; MONFORTE L.; MORENO A.; NAVARRO E. and SENENT F. (1987) Atmospheric Radioactivity in Valencia Spain due to the Chernobyl Reactor accident *Health Phys.* **53(5)** 519-24.
- FRY F.A.; CLARKE R.H. and O'RIORDAN M.C. (1986) Early estimates of U.K. radiation doses from the Chernobyl reactor *Nature* **321** 193-95.
- GAETA CABALLERO R.(1991a) Detectores de centelleo. In *Medida de la radiactividad ambiental* (ed. CIEMAT) **Cap. 7** 7-16.
- GAETA CABALLERO R.(1991b) Optimización de la medida de radiactividad ambiental. In *Medida de la radiactividad ambiental* (ed. CIEMAT) **Cap. 13** 13-5.
- GARCIA-ROSSELL L. and MARTIN PEREZ A. (1970a) Relación U/Th en sedimentos carbonosos. I. Cuenca de Arenas del Rey (Granada) *Bol. R. Soc. Española Hist. Nat. (Geol.)* **68** 57-64.
- GARCIA-ROSSELL L. and MARTIN PEREZ A. (1970b) Relación U/Th en

BIBLIOGRAFÍA

sedimentos carbonosos. II. Depresión del Ebro. *Bol. R. Soc. Española Hist. Nat. (Geol.)* **68** 65-72.

GARCIA-ROSSELL L. and MARTIN PEREZ A. (1970c) Uranio y Renio en rocas sedimentarias. Lignitos de Arenas del Rey (Granada) *Bol. Geol. Min.* **T-LXXXI-VI**, 603-613.

GARCIA-ROSSELL L. and MARTIN PEREZ A. (1971a) Uranio y Renio en rocas sedimentarias. II. Cuenca Miocena de Granada *Bol. Geol. Min.* **LXXXII-I**, 65-69.

GARCIA-ROSSELL L. and MARTIN PEREZ A. (1971b) Uranio y Renio en rocas sedimentarias. III. Lignitos de la Depresión del Ebro *Bol. Geol. Min.* **LXXXII-II**, 178-185.

GARZÓN L. (1978) La radiactividad de la corteza terrestre. In *Radiactividad y medio ambiente* Servicio de Publicaciones Universidad de Oviedo.

GIL-LÓPEZ E. (1986) Consecuencias radiológicas del accidente de Chernobyl *Nuclear España* **48** 41-46.

GOLD S.; BARKHAU H.W.; SCHLEIEN B and KAHN B. (1964) Measurements of naturally occurring radionuclides in air In *The Natural Radiation Environment* University of Chicago Press.

GÓMEZ ESCOBAR V.; VERA TOMÉ F.; LOZANO J.C. and MARTIN-SANCHEZ A. (1996) Determination of ^{222}Rn and ^{226}Ra in Aqueous Samples Using a Low-level Liquid Scintillation Counter. *Appl. Radiat. Isot.* **47** 9/10 861-67.

GONZÁLEZ-GÓMEZ C. (1992) University of Granada Radiocarbon Dates VI. *Radiocarbon* **34** 133-139.

GONZÁLEZ-GÓMEZ C.; CAMACHO-GARCÍA A. (1994) Vigilancia de la radiactividad natural en el Sureste Peninsular. *Recursos Naturales y Medio Ambiente en el Sudeste Peninsular*. Ed. Instituto de Estudios Almerientes 81-93.

GONZÁLEZ-GÓMEZ C.; CAMACHO-GARCÍA A.; CUESTA-AGUILAR M. J. (1995) Estudio preliminar sobre: Correlación de la medida de Cesio-137 en suelos con procesos de erosión en zonas de olivar de Jaén y Córdoba. *Jornadas Técnicas sobre Normalización de Procedimientos en el Plan REVIRA*. Madrid, Nov. 1995.

GONZÁLEZ GONZÁLEZ J.A. (1993) Estadística de medidas radiactivas. In *Normalización de procedimientos en el plan REVIRA*. **Cap. 7**

GSN-03 Guía para el establecimiento de un programa de vigilancia radiológica ambiental en las zonas de influencia de las centrales nucleares.

BIBLIOGRAFÍA

GUNDERSEN L.C.S. and SZABOZ (1995) Natural Radionuclides in Earth, Air and Water, and the Effect on Human Health. *Energy and Environment-Application of Geosciences to Decision Making*. 10th V. E. McKelvey Forum on Mineral and Energy Resources. U. S. Geological Survey Circular 1108 111-113.

GUTIERREZ J.; ROBLES B.; BAIXERAS C.; FONT L. (1994) El Radón en viviendas *Protección Radiológica*, Otoño, 1994, 10-13.

HENNIES H. (1986) Radiation measurements in Germany resulting from the Chernobyl accident. *Nuclear Europe* 7 22-25.

HESS C.; MICHEL J.; HORTON T.; PRICHARD H. and CONIGLIO W. (1985) The occurrence of radioactivity in public water supplies in the USA *Health Phys.* 48(5) 553-58.

HESS C. T. and BEASLEY S. M. (1990) Setting up a Laboratory for Radon in Water Measurements. In *Radon, Radium and Uranium in Drinking Water* (ed. C. R. Cothorn and P. A. Rebers) Cap. 13 196.

HIGHTOWER J. H. and WATWON J.E. (1995) ^{222}Rn in water: a study of two sample collection methods, effects of mailing samples and temporal variation of concentrations in North Carolina groundwater. *Health Phys.* 69(2) 219-226.

HORIUCHI K. and MURAKAMI Y. (1981) A New Procedure for the Determination of Radium in Water by Extraction of Radon and Application of Integral Counting with a Liquid Scintillation Counter. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 32 291-294.

HÖTZL H.; ROSNER G and WINKLER (1991) Correlation of ^7Be Concentration in surface Air and Precipitation with the Solar Cycle. *Naturwissenschaften* 78 215-217.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (1989) Measurements of Radionuclides in Food and Environment IAEA-TECDOC-295, Vienna.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (1997) Ten years after Chernobyl: What do we really know? IAEA/PI/A51E, Vienna.

INTERNATIONAL COMMISSION OF RADIOLOGICAL PROTECTION (1977) Recommendations of the ICRP *ICRP Publication n°26 1 n°3*.

INTERNATIONAL COMMISSION OF RADIOLOGICAL PROTECTION (1983) Radionuclide Transformations-Energy and Intensity of Emmissions *ICRP Publication n°38 11-13*

INTERNATIONAL COMMISSION OF RADIOLOGICAL PROTECTION (1983) Principles for Limiting Exposure of the Public to Natural Sources of Radiation *ICRP*

Publication n°39.

INTERNATIONAL COMMISSION OF RADIOLOGICAL PROTECTION (1993) Protection Against Radon-222 at Home and at Work *ICRP Publication n°65.*

ISHIKAWA Y; MURAKAMI H; SEKINE T and YOSHIHARA K. (1995) Precipitation Scavenging Studies of Radionuclides in Air Using Cosmogenic ^7Be *J. Environ. Radioactivity* **26** 19-36.

KATHREN R.R. (1984) Radioactivity in the Environment: Sources, Distribution and Surveillance. Harwood Academic Publiser GmbH. Amsterdam.

KITTO M.E. (1994) Characteristics of Liquid Scintillation Analysis of Radon in Water. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* **185(1)** 91-99.

KITTO M.E. and KUHLAND M.K. (1995) Radon Measurements in Groundwater. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* **193(2)** 253-258.

KOKOTTI H; KORHONEN P.; KESKIKURU T. and KALLIOKOSKI P. (1995) Effect of Ventilation on Radon Levels in Underground Workplaces. *Occupational Hygiene* **1** 305-315.

KORHONEN P.A.; KOKOTTI H. and KALLIOKOSKI P. (1994) Detection and Mitigation of Occupational Radon Exposure in Underground Workplaces. *Proc. 15th AIVC Conference. The Role of Ventilation* **1** 183-191.

KORHONEN P.A.; KOKOTTI H. and KALLIOKOSKI P. (1996) Comparison of Indoor Levels of Radon Between Workplaces and Homes Located Nearby in Different Parts of Finland. *Proc. 17th AIVC Conference. Optimun Ventilation and Air Flow Control in Buildings* **1**.

LAL D. and PETERS B. (1967) Cosmic-ray produced radioactivities on the Earth *Hand. Phys.* **46** 551-612.

LIGER PEREZ E. (1996) Resultados y Análisis de un Programa de Vigilancia Radiológica Ambiental. *Tesis Univ. Málaga.*

LIN W. J. and HARBOTTLE G. (1991) Gamma Ray Emmision Intensities of ^{226}Ra in Equilibrium with its Daughter Products *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **153(2)** 137-149.

LIN W. J. and HARBOTTLE G. (1992) Gamma Ray Emmision Intensities of the ^{232}Th Chain in Secular Equilibrium, of ^{235}U and the Progeny of ^{238}U *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **157(2)** 367-372.

LÓPEZ PEÑALVER J.J. (1999) Estudio radiológico del agua potable en poblaciones del litoral granadino. Tesina de Licenciatura. Univ. de Granada.

- LOUGTIN J. (1990) Occurrence of Radionuclides in Drinking Water, a National Study. In *Radon, Radium and Uranium in Drinking Water* Ed. Lewis Publishers Inc. **Cap.8** 97-139.
- LUYANAS V.Y. (1964) Radioactive isotopes in the atmosphere and their use in Meteorology. In *Nuclear meteorology. Proc. of the All-Union Conference on Nuclear Meteorology* at Obninsk. 12-18.
- MALANCA A. (1994) Measurements of gamma radiation in three underground scheelite mines *J. Environ. Radioactivity* **23** 71-80.
- MARTELL E.A. (1970) Transport patterns and residence times for atmospheric trace constituents vs altitude In *Radionuclides in the Environment* Adv. Chem. Ser. **Vol.93** 138-57.
- MARTÍN-VALLEJO M. (1997) El sistema hidrotermal de la Cuenca del Rio Almanzora (N. De la provincia de Almeria). *Tesis Univ. Granada*
- MARTIN-SALAS A; PARDOS M. and CASANOVA J. (1979) Medida de la exhalación del Rn (^{222}Rn) y estudio de la influencia sobre la misma de ciertas condiciones meteorológicas y del suelo *Anales Fis.* **75** 135-39.
- MEGUMI K. and MAMURO T. (1974) Emanation and Exhalation of Radon and Thoron Gases From Soil Particles. *J. Geophys. Res.* **79(23)** 3357-60.
- MICHEL J. (1990) Relationship of Radium and Radon with Geological Formations In *Radon, Radium and Uranium in Drinking Water* Ed. Lewis Publishers Inc. **Cap. 7** 83-95.
- MILLS W.A. (1990) Risk Assessment and Control Management of Radon in Drinking Water. In *Radon, Radium and Uranium in Drinking Water* Ed. Lewis Publishers Inc. **Cap.3** 27-37.
- MORAWSKA L. (1989) Investigation of a Specific Surface Area of a Material on the Basis of ^{222}Rn Emanation Coefficient Measurements *Health Phys.* **54** 23-27.
- MORAWSKA, L; PHILIPS, C. L. (1993) Dependence of the Radon emanation coefficient on radium distribution and internal structure of the material. *Geochim. Cosmochim. Acta* **57**, 1783-1797.
- NAGDA N. L. (1994) Radon. A Multifaceted Environmental Problem: An Overview In *Radon Prevalence, Measurements, Health Risks and Control* Ed. ASTM.
- OLOF J. (1970) The content of some natural radioactive elements, especially Rn-222 in some potable waters in Sweden *National Institute of Radiation Protection SSI:1970-*

029 Stockholm, Sweden.

OLSEN C.R.; LARSEN I.L.; LOWRY P.D.; CUTSHALL N.H.; TODD J.F.; WONG G.T.F. and CASEY W.H. (1985) Atmospheric Fluxes and marsh soil inventories of ^7Be and ^{210}Pb *J. Geophys. Res.* **90 (D6)** 10487-95.

ORTEGA X.; SEMPAU J. and ZÄHRINGER M. (1994) Estudio de las correlaciones radiometeorológicas en las estaciones de vigilancia ambiental *XX Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española* Cordoba.

PACKARD Instrument Company, Inc. (1982) Operation manual Tri-carb 4640, liquid scintillation System.

PALOMARES LOPEZ J. (1993) Medidas ambientales por espectrometría gamma. In. *Normalización de Procedimientos y Medida en el Plan REVIRA. Cap. 5.3.*

PANIAGUA J.M. (1991) Concentración radiactiva en muestras de suelo en la provincia de Cáceres. Modelización dosimétrica por irradiación externa Tesis Doctoral. Univ. de Extremadura.

PAPASTEFANOU C. and BONDIETTI E.A. (1991) Mean residence times of atmospheric aerosols in the boundary layer as determined from $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ activity ratios *J. Aerosol. Sci.* **22** 927-31.

PAPASTEFANOU C. and IOANNIDOU A. (1994) Aerodynamic Size Association of ^7Be in Ambient Aerosols. *J. Environ. Radioactivity.* **26** 273-281.

PARKS N. J. and TSUBOI K. K. (1978) Emulsion Scintillation Counting of Radium and Radon. *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes* **29** 77-80.

PÖHL E and PÖHL-RULING J. (1976) Determination of Environmental or Occupational ^{222}Rn in Air and Water and ^{226}Ra in Water with a Feasible and Rapid Methods of Sampling and Measurement. *Health Phys.* **31** 343-348.

PRICHARD H. M. and GESSELL T. F. (1977) Rapid Measurements of ^{222}Rn Concentrations in Water with a Commercial Liquid Scintillation Counter. *Health Phys.* **33** 577-581.

PYATT F.B. (1987) After Chernobyl-some data on radioactivity in Scandinavia. *Int. J. Environ. Studies* **29** 197-199.

QUINDÓS L.S.; FERNÁNDEZ P.L. and SOTO J. (1991) National Survey on Indoor Radon in Spain *Environ. Int.* **17** 449-53.

QUINDÓS L.S.; FERNÁNDEZ P.L. and SOTO J. (1993) Exposure to Natural Sources of Radiation in Spain *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* **21(2)** 295-98.

QUINDÓS L.S.; FERNÁNDEZ P.L. and SOTO J. (1995) Study of areas of Spain with high indoor radon *Radiat. Meas.* **24(2)** 207-10.

QUINDÓS PONCELA L. (1996) Radón. Un gas radiactivo de origen natural en su casa. *CSN- Univ. Cantabria*.

RADDECAY (1990) Chart of the Nuclides.

RAMACHANDRAN T.V.; SUBBARAMU M.C. and MISHRA U.C. (1990) A correlation study of radon in dwellings with radium content of soil *Current Sci.* **59n°20** 979-82.

RANDALL S.R.; ASHER-BOLINDER S.; FINCH W.I.; GUNDERSEN L.C.S.; OTTON J.K.; OWEN D.E.; PIERSON C.T.; REIMER G.M. and ZIELINSKI R. (1995) Radionuclides-Energy Resources and Environmental Hazards. *Energy and Environment-Application of Geosciences to Decision Making*. 10th V. E. McKelvey Forum on Mineral and Energy Resources. **U. S. Geological Survey Circular 1108**.

RANKAMA K. (1963) Nuclear Reactions in Nature In *Progress in isotope geology* Ed. Interscience.

RIESE A.C. (1982) Adsorption of radium and thorium onto quartz and kaolinite: A comparison of solution/surface equilibria models. *Ph.D. dissertation, Colorado School of Mines*, Golden 292.

ROGERS A. S. (1958) Physical behavior and geologic control of radon in mountain streams. *U. S. Geol. Survey Bull.* **1052E** 187-211.

RUFO PÉREZ M.M. (1994) Variaciones estacionales de la concentración de ^7Be en un emplazamiento de Cáceres. *Tesis de Licenciatura Univ. Cáceres*.

SATO J.; DOI T.; SEGAWA T. and SUGAWARA S.I. (1994) Seasonal variation of atmospheric concentrations of ^{210}Pb and ^7Be at Tsukuba, Japan, with a possible observation of ^{210}Pb originating from the 1991 eruption of Pinatubo volcano, Philippines. *Geochem. J.* **28** 123-129.

SCHÖNHOFER F. and HENRICH E. (1987) Recent progress and application of low level liquid scintillation counting. *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles* **115(2)** 317-33.

SCHÖNHOFER F. (1992) Measurement of ^{226}Ra in water and ^{222}Rn in water and air by liquid scintillation counting. *Radiat. Protec. Dos.* **45(1/4)** 123-125.

SCHÖTZIG U. and DEBERTIN K. (1983) Photon Emission Probabilities per Decay of ^{226}Ra and ^{232}Th in Equilibrium with their Daughter Products *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes* **34(2)** 533-538.

- SCHULTZ R.K. (1965) Soil chemistry of radionuclides *Health Phys.* **11** 1317-52.
- SCHUMANN G. and STOEPLER M. (1963) Beryllium-7 in the Atmosphere *J. Geophys. Res.* **68** 3827-3830.
- SCHUMANN R.R.; GUNDERSEN L.C. and TANNER A.B. (1994) Geology and Occurrence of Radon *In Radon Prevalence, Measurements, Health Risks and Control* Ed. ASTM.
- SLINN W.G. (1984) Precipitation scavenging *In Atmospheric science and power production* Ed. D. Randerson **Rep. DOE/TIC-27601 USDOE**, Washington D.C.
- SOTO-TORRES J.; QUINDÓS L. S.; DIAZ-CANEJA N.; GUTIERREZ I. and FERNANDEZ P.L. (1988) ^{226}Ra and ^{222}Rn in natural waters in two typical locations in Spain. *Radiat. Protec. Dos.* **24(1/4)** 109-111.
- SOTO-TORRES J.; DELGADO-MACIAS M.T.; FERNÁNDEZ-NAVARRO P.; GÓMEZ-ARZAMENA J. and QUINDÓS L. S. (1992) Niveles de radiactividad en balnearios de Galicia. *Mapfre Medicina* **3** 211-214.
- SOTO-TORRES J.; FERNÁNDEZ P.L.; GÓMEZ-ARZAMENA J. and RÓDENAS (1995a) Study of the occurrence of ^{222}Rn and ^{226}Ra in Drinking Water in Spain. *Health Phys.* **69(6)** 961-965.
- SOTO-TORRES J.; GÓMEZ-ARZAMENA J. (1995b) Efectos horméticos en balnearios radiactivos. *Bol. Soc. Esp. Hidrol. Méd.*, **X nº 3**, 133-138.
- SOTO-TORRES J.; QUINDÓS L. S.; COS S.; SANCHEZ-BARCELÓ E.J. (1996) Influence of low doses of radiation due to ^{222}Rn on proliferation of fibroblasts and MCF-7 human breast cancer cells in vitro *The Sci. Total Environ.*, **181**, 181-185.
- STEINHAUSLER F. (1988) Radon Spas: source term, doses and risk assesment *Radiat. Protec. Dos.* **24(1/4)** 257-59.
- SUAREZ MAHOU E. and FERNANDEZ AMIGOT J.A. (1996) El mapa de la radiactividad natural de España. *Estratos* **41** 10-15.
- SYSTEM 100 (1990) User's Manual.
- TREMBLAY J. and SERVIRANCK X. (1993) Beryllium-7 as a tracer of stratospheric ozone: a case study *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* **172(1)** 49-56.
- UNSCEAR (1988) Sources effects and risks of ionizing radiation. Report to the General Assembly, with annexes United Nations Scientific Committee on the effects of Atomic

Radiation. United Nations. New York.

VALCÁRCEL CASES M.; GÓMEZ HENS A. (1990) Técnicas analíticas de separación. Cap. 7-8: Extracción líquido-líquido (I) y (II). Ed. Reverté S.A.

VIEZZEE W. and SINGH H.B. (1980) The distribution of Beryllium-7 in the troposphere: Implications on stratospheric/tropospheric air exchange *Geophys. Res. Lett.* **7** 805-808.

YOUNG J.A. and SILKER W.A. (1974) The determination of air-sea exchange and oceanic mixing rates using ^7Be during the BOMEX Experiment *J. Geophys. Res.* **79(30)** 4481-89.

YOUNG J.A. and SILKER W.A. (1980) Aerosol deposition on the Pacific and Atlantic oceans calculated from ^7Be measurements *Earth Plan. Sci. Lett.* **50** 92-104.

WALLBRINK P.J. and MURRAY A.S. (1994) Fallout of ^7Be in South Eastern Australia *J. Environ. Radioactivity* **25** 213-228.

WALLING D.E. and QUINE T.A. (1993) Use of Caesium-137 as a Tracer of Erosion and Sedimentation: Handbook for the Application of the Caesium-137 Technique Univ. Exeter.

ZIKOVSKY L.; BLAGOEVA R. (1994) Dose rate associated with activity of Radium-226 in Canadian Soils *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **185**, 127-131.

SPECTRAN-AT V.4.0. (1987) User's Manual. Canberra Industries Inc. USA.

GS-1.4. Control y vigilancia radiológica de efluentes radiactivos líquidos y gaseosos emitidos por centrales nucleares.

CAPÍTULO VIII: ANEXOS

VIII.1.Relación de Figuras.

Figura 1. Localización de los puntos de muestreo	8
Figura 2. Cuadro resumen del tipo de muestras que se presentan en esta Tesis	9
Figura 3. Fuentes de exposición de origen natural y artificial	12
Figura 4. Esquema de desintegración del K-40	21
Figura 5. Esquema de desintegración de la serie del U-238	24
Figura 6. Esquema de desintegración de la serie del U-235	26
Figura 7. Esquema de desintegración de la serie del Th-232	27
Figura 8. Evolución temporal del depósito del Cs-137 procedente de las pruebas atmosféricas de las armas nucleares en los Hemisferios Norte y Sur	31
Figura 9. Mapa radiométrico peninsular	55
Figura 10. Cabeza captora del muestreador de aire	60
Figura 11. Batea colectora del agua de lluvia	62
Figura 12. Plantilla para el muestreo de suelos	63
Figura 13. Espectro del coctel gamma utilizado en la preparación de los patrones gamma	67
Figura 14. Detector de Germanio tipo reverse (REGe)	69
Figura 15. Configuración del REGe	70
Figura 16. Blindaje del detector de Ge	73
Figura 17. Espectrómetro de centelleo líquido Packard modelo TRI-CARB 4640	76
Figura 18. Espectro beta obtenido con un detector de centelleo líquido	86
Figura 19. Curvas de calibrado en eficiencias obtenidas para las diversas geometrías utilizadas	124
Figura 20. Histograma de frecuencias de la eficiencia en la ventana del ^{222}Rn	129
Figura 21. Curva de eficiencia del patrón de $^{90}\text{Sr} / ^{90}\text{Y}$	131
Figura 22. Evolución de los fondos en centelleo líquido	133
Figura 23. Actividad de Be-7 en muestras trimestrales del periodo 1993-1997	148
Figura 24. Actividad de Be-7 y cantidad de aerosoles en 1995	152
Figura 25. Actividad de Be-7 y cantidad de aerosoles en 1996	152
Figura 26. Actividad de Be-7 y cantidad de aerosoles en 1997	153
Figura 27. Evolución temporal de la actividad trimestral de los radionúclidos ^{210}Pb y Be-7.	162
Figura 28. Evolución de la actividad trimestral debida al ^7Be en agua de lluvia y en aerosoles.	163
Figura 29. Actividades detectadas en muestras transportadas en recipientes de polietileno y vidrio cuando el tiempo transcurrido desde la toma de muestra es de 6 horas.	171
Figura 30. .Actividades detectadas en muestras transportadas en recipientes de polietileno y vidrio cuando el tiempo transcurrido desde la toma de muestra es de 12 horas.	171
Figura 31. .Actividades detectadas en muestras transportadas en recipientes de polietileno y vidrio cuando el tiempo transcurrido desde la toma de muestra es de 24 horas.	172
Figura 32. Resultados obtenidos para muestras conservadas en frigorífico.	176
Figura 33. Resultados obtenidos para muestras conservadas a temperatura ambiente.	176
Figura 34. Diagrama de Box and Whisker del porcentaje extraído frente al tiempo de contacto de las fases.	179
	230

Figura 35. Diagrama de Box and Whisker del porcentaje extraído en función del tiempo de agitación.	181
Figura 36. Diagrama de Box and Whisker del porcentaje extraído en función del volumen de tolueno utilizado.	182
Figura 37. Histograma de frecuencias del porcentaje de ^{222}Rn extraído con tolueno.	183
Figura 38. Contenido en ^{222}Rn y temperatura de las aguas de los manantiales.	188
Figura 39. Error relativo en función de la actividad de la muestra empleando espectrometría gamma.	190
Figura 40. Curva granulométrica del suelo gris del manantial T-1.	192
Figura 41. Curva granulométrica del suelo amarillo del manantial T-1.	193
Figura 42. Curva granulométrica del suelo del manantial T-7.	195
Figura 43. Curva granulométrica del suelo del manantial T-8.	196
Figura 44. Curva granulométrica del suelo del manantial T-9.	197
Figura 45. Curva granulométrica del suelo del manantial T-10.	198
Figura 46. Curva granulométrica del suelo del manantial T-11.	199
Figura 47. Curva granulométrica del suelo oscuro del manantial T-13.	200
Figura 48. Curva granulométrica del suelo rojo del manantial T-13.	201
Figura 49. Curva granulométrica del suelo del manantial T-14.	202
Figura 50. Curva granulométrica del suelo del manantial T-15.	203
Figura 51. Curva granulométrica del suelo de los manantiales T-16 y T-17.	204
Figura 52. Curva granulométrica del suelo de los manantiales T-20 a T-25.	205

VIII.2. Relación de Tablas.

Tabla I. Programa de muestreo y análisis de los laboratorios asociados a la red REVIRA.	3
Tabla II. Ubicación de los puntos de muestreo de agua subterránea.	7
Tabla III. Diversos radionúclidos cosmogénicos.	18
Tabla IV. Radionúclidos sin relación genética.	20
Tabla V. Radionúclidos presentes en muestras atmosféricas.	35
Tabla VI. Concentraciones de Be-7 detectadas en muestras de aire superficial de diferentes latitudes.	38
Tabla VII. Contenidos en U, Th y K de las rocas ígneas y sedimentarias.	53
Tabla VIII. Límites de incorporación de radionúclidos presentes en muestras ambientales.	58
Tabla IX. Características de los radionúclidos que constituyen el cóctel patrón utilizado.	67
Tabla X. Distribución de Rn-222 en agua y aire.	82
Tabla XI. Ubicación de los puntos de muestreo del agua subterránea.	82
Tabla XII. Picos producidos por el patrón utilizado para el calibrado en energías.	88
Tabla XIII. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis trimestral de los filtros de partículas de polvo.	90
Tabla XIV. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis mensuales (4 semanas) de los filtros de partículas de polvo.	91
Tabla XV. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis mensual (5 semanas) de los filtros de partículas de polvo.	92
Tabla XVI. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis semanal de los filtros de partículas de polvo.	93
Tabla XVII. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis de las muestras medidas en recipientes tipo Marinelli de un litro.	94
Tabla XVIII. Características del patrón de espectrometría gamma utilizado para el análisis de muestras de agua evaporada sobre lámina de plástico.	95
Tabla XIX. Características de los patrones de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$.	96
Tabla XX. Posibles radionúclidos presentes en el fondo.	101
Tabla XXI. Relación de tamices empleados en la granulometría de las gravas.	109
Tabla XXII. Relación de tamices empleados en la granulometría de las arenas.	110
Tabla XXIII. Estadísticos del conjunto de datos correspondientes a los coeficientes de los calibrados en energías.	120
Tabla XXIV. Coeficientes de los calibrados en eficiencias utilizados para cada geometría en los intervalos energéticos que se citan.	123
Tabla XXV. Estadísticos de la radiación de fondo (en cpm) en los fotopicos de diversos radionúclidos.	126
Tabla XXVI. Datos para el calibrado en eficiencias del $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$.	130
Tabla XXVII. Estadísticos de los fondos medidos mediante centelleo líquido.	132
Tabla XXVIII. LID en centelleo líquido para las diversas zonas de trabajo.	132
Tabla XXIX. Valores de actividad de ^{131}I en muestras semanales de 1993.	134
Tabla XXX. Valores de actividad de ^{131}I en muestras semanales de 1994.	135
Tabla XXXI. Valores de actividad de ^{131}I en muestras semanales de 1995.	136
Tabla XXXII. Valores de actividad de ^{131}I en muestras semanales de 1996.	

Tabla XXXIII. Valores de actividad de ^{131}I en muestras semanales de 1997.	138
Tabla XXXIV. Estadísticas de los valores del LID del ^{131}I correspondientes al periodo 1993-1997.	139
Tabla XXXV. Valores de Actividad de ^7Be en muestras semanales del primer semestre de 1995.	140
Tabla XXXVI. Valores de Actividad de ^7Be en muestras semanales del segundo semestre de 1995.	141
Tabla XXXVII. Valores de Actividad de ^7Be en muestras semanales del primer semestre de 1996.	142
Tabla XXXVIII. Valores de Actividad de ^7Be en muestras semanales del segundo semestre de 1996.	143
Tabla XXXIX. Valores de Actividad de ^7Be en muestras semanales del primer semestre de 1997.	144
Tabla XL. Valores de Actividad de ^7Be en muestras semanales del segundo semestre de 1997.	145
Tabla XLI. Niveles de significación del conjunto de datos semanales de ^7Be .	146
Tabla XLII. Estadísticas del conjunto de datos de ^7Be correspondientes al periodo 8/3/95 – 24/12/97.	147
Tabla XLIII. Coeficientes de correlación entre la actividad semanal de ^7Be y ciertas variables meteorológicas y el nivel de significación asociado.	150
Tabla XLIV. Coeficientes de determinación de los datos semanales de ^7Be y las variables meteorológicas.	150
Tabla XLV. Ecuaciones obtenidas mediante regresión múltiple de los datos semanales de ^7Be y las variables meteorológicas.	151
Tabla XLVI. Valores de actividad de ^7Be y ^{210}Pb en las muestras mensuales de 1995.	155
Tabla XLVII. Coeficientes de correlación de los datos mensuales de ^7Be y ^{210}Pb correspondientes a 1995 y las variables meteorológicas.	155
Tabla XLVIII. Valores de actividad de ^7Be y ^{210}Pb en las muestras mensuales de 1996.	156
Tabla XLIX. Coeficientes de correlación de los datos mensuales de ^7Be y ^{210}Pb correspondientes a 1996 y las variables meteorológicas.	156
Tabla L. Valores de actividad de ^7Be y ^{210}Pb en las muestras mensuales de 1997.	157
Tabla LI. Coeficientes de correlación de los datos mensuales de ^7Be y ^{210}Pb correspondientes a 1997 y las variables meteorológicas.	157
Tabla LII. Valores de la actividad de ^7Be y ^{210}Pb en muestras trimestrales del periodo 1993-1997.	159
Tabla LIII. Coeficientes de correlación de los datos trimestrales de ^7Be y ^{210}Pb correspondientes a 1993-1997 y las variables meteorológicas.	160
Tabla LIV. Coeficientes de correlación entre las actividades trimestrales de ^7Be y ^{210}Pb y las variables meteorológicas y niveles de significación asociados.	161
Tabla LV. Valores de actividad de ^7Be en muestras trimestrales de agua de lluvia correspondientes al periodo 1993-1997.	164
Tabla LVI. Valores de actividad de ^{210}Pb en muestras trimestrales de agua de lluvia correspondientes al periodo 1993-1997.	165
Tabla LVII. Coeficientes de correlación entre las actividades trimestrales de ^7Be en agua de lluvia y las variables meteorológicas y niveles de significación asociados.	165
Tabla LVIII. Características de las aguas subterráneas estudiadas.	168
	233

Tabla LIX. Estudio de la pérdida por difusión a través de las paredes de los recipientes de plástico.	174
Tabla LX. Periodos de semidesintegración obtenidos en las muestras medidas mediante Centelleo Líquido.	178
Tabla LXI. Contenido en Rn-222 de los manantiales de La Malahá.	184
Tabla LXII. Contenido en Rn-222 del pantano de Los Bermejales.	184
Tabla LXIII. Contenido en Rn-222 del Valle de Lecrín.	185
Tabla LXIV. Contenido en Rn-222 de los manantiales de Colomera.	186
Tabla LXV. Contenido en Rn-222 de los manantiales del dominio hercínico.	186
Tabla LXVI. Radionúclidos detectados en el suelo T-1 gris.	192
Tabla LXVII. Radionúclidos detectados en el suelo T-1 amarillo.	193
Tabla LXVIII. Radionúclidos detectados en el suelo T-3.	194
Tabla LXIX. Radionúclidos detectados en el suelo T-7.	195
Tabla LXX. Radionúclidos detectados en el suelo T-8.	196
Tabla LXXI. Radionúclidos detectados en el suelo T-9.	197
Tabla LXXII. Radionúclidos detectados en el suelo T-10.	198
Tabla LXXIII. Radionúclidos detectados en el suelo T-11.	199
Tabla LXXIV. Radionúclidos detectados en el suelo oscuro T-13.	200
Tabla LXXV. Radionúclidos detectados en el suelo rojo T-13.	201
Tabla LXXVI. Radionúclidos detectados en el suelo T-14.	202
Tabla LXXVII. Radionúclidos detectados en el suelo T-15.	203
Tabla LXXVIII. Radionúclidos detectados en el suelo T-17.	204
Tabla LXXIX. Radionúclidos detectados en el suelo T-20.	205
Tabla LXXX. Características granulométricas, contenido en materia orgánica y humedad de los suelos estudiados.	206
Tabla LXXXI. Radionúclidos detectados en el suelo de Quéntar en el periodo de Diciembre-92 a Octubre-97.	208