



**TESIS DOCTORAL**

**Estudio de la dinámica de la radiactividad  
atmosférica en Cáceres**

**Antonio Rodríguez Perulero**

**Modelización y Experimentación en Ciencia y Tecnología**

**2017**



ANTONIO SALVADOR BAEZA ESPASA, Catedrático de Universidad perteneciente al Departamento de Física Aplicada y adscrito a la Facultad de Veterinaria de la Universidad de Extremadura y,

FRANCISCO JAVIER GUILLÉN GERADA, profesor Contratado Doctor perteneciente al Departamento de Física Aplicada y adscrito a la Facultad de Veterinaria de la Universidad de Extremadura.

INFORMAN:

Que la presente memoria, titulada “Estudio de la dinámica de la radiactividad atmosférica en Cáceres”, ha sido realizada por el Licenciado en Química D. Antonio Rodríguez Perulero, bajo nuestra dirección, para optar al Título de Doctor.

Y, para que así conste, a petición del interesado, firmamos la presente en Cáceres, a 25 de Enero de 2017.

Fdo. Antonio S. Baeza Espasa

Fdo. Francisco Javier Guillén Gerada



Cuando se finaliza un trabajo científico, como el que se resume en la presente memoria, la satisfacción personal que se siente es enorme. Sin embargo, todas las dificultades que se pueden presentar y el arduo trabajo que conlleva el mismo, no podrían ser abordados sin la colaboración e implicación de numerosas personas, que bien desde un primer o segundo plano han contribuido a la realización del mismo. Por ello, quiero mostrar mi más sincera gratitud a todos ellos por su participación y complicidad en este estudio.

Por ello, en primer lugar, quiero agradecer especialmente a D. Antonio Baeza y D. Javier Guillén, directores de esta Tesis Doctoral, la confianza depositada en mí para abordar y realizar este trabajo. Mostrar mi enorme gratitud, sobre todo por el entusiasmo, los conocimientos y experiencia científica que me han transmitido en todo momento, orientándome con las oportunas correcciones y consejos. Así como por la enorme paciencia que han tenido conmigo durante la realización de este trabajo.

Asimismo, quisiera agradecer muy sinceramente a todos mis compañeros del LARUEX, su enorme apoyo y ayuda a lo largo de todos estos años. En especial a Yolanda Miralles, M<sup>a</sup> Ángeles Ontalba, José Vasco, Alejandro Salas y José Ángel Corbacho, por sus innumerables consejos y ayudas, así como por su amistad e incansables ánimos en el desarrollo de este trabajo.

A Conrado Miró, compañero del departamento de Física Aplicada, por sus valiosos consejos en los inicios de mi tesis doctoral.

A Felipe Mogena, que con su buen humor y ayuda hacía que el día a día fuese más llevadero.

A Guillermo Sánchez, Álvaro Collado y Juan Gabriel Muñoz por su amistad y, por la enorme y valiosa ayuda que me proporcionaron en el desarrollo de esta tesis.

A Manolo Caballero, Ana Muñoz, Juan Baeza, David Corrales, Estrella, por su amistad y por la enorme predisposición a la hora de echar una mano.

A Aaron Ruiz, del Centro Nacional de Aceleradores de Sevilla, por los conocimientos que me ha transmitido en la separación y medida de  $^{10}\text{Be}$  y, por su enorme hospitalidad en mi estancia en el CNA.

No quisiera olvidar tampoco a todos aquellos compañeros que en la actualidad no están en el LARUEX, pero que sin duda contribuyeron también al desarrollo de esta tesis (Javi Miranda, Patricia, M<sup>a</sup> Ángeles Granado, Ismael, Juani, ...).

Y por supuesto, a mis padres, hermanos, sobrinas y demás familia, que me han apoyado y animado en todo momento.

El presente estudio se ha realizado merced al apoyo de la Junta de Extremadura (Consejería de Agricultura y Medio Ambiente) y el Consejo de Seguridad Nuclear a través de los Convenios de Colaboración en materia de Vigilancia Radiológica Ambiental, suscritos entre dichas entidades y el LARUEX; los cuales han sufragado una parte importante de los gastos contraídos durante la ejecución del presente trabajo.

Asimismo, este trabajo ha sido posible gracias a la financiación del Ministerio de Ciencia e Innovación de España al proyecto titulado “Caracterización de la evolución temporal radiactiva de los aerosoles presentes en un emplazamiento exento de término fuente” (Código: CTM2006-11105); así como a la obtenida para el proyecto “Valoración del Impacto radiactivo del tritio atmosférico por la puesta en funcionamiento de las nuevas torres de refrigeración de la Central Nuclear de Almaraz” (IB10090) del Plan Regional de Investigación, cofinanciado por el Gobierno de Extremadura (Consejería de Empleo, Empresa e Innovación) y la Unión Europea a través del Fondo Europeo de Desarrollo Regional.

Por último, agradecer a la Delegación Territorial de la Agencia Estatal de Meteorología en Extremadura (Badajoz) la colaboración prestada, al suministrarnos numerosos datos meteorológicos, que sin duda han sido imprescindibles para nuestra investigación.

Si el amor por un hijo se pudiera  
expresar, no habrían hojas suficientes  
para escribirlo, ni tiempo para contarlo.

A mi hija, Blanca y  
mi mujer Ana.



# ÍNDICE

<b>1.- INTRODUCCIÓN</b>	1
1.1.- Interés del trabajo.	3
1.2.- Antecedentes y desarrollo actual del tema.	5
<b>2.- TRITIO EN LA ATMÓSFERA</b>	9
2.1.- Introducción.	10
2.1.1.- Orígenes del tritio.	10
2.1.2.- Importancia del tritio en la naturaleza. Ciclo hidrológico.	14
2.1.3.- Objetivos del estudio.	16
2.2.- Recogida, tratamiento y medida de las muestras.	20
2.2.1.- Tipos de muestras. Recogida y periodicidad de muestreo.	20
2.2.1.1.- Vapor de agua atmosférico.	21
2.2.1.2.- Agua de lluvia.	25
2.2.1.3.- Agua superficial.	26
2.2.2.- Determinación de los niveles de concentración de tritio.	27
2.2.2.1.- Preparación y medida directa (PL-77, LARUEX).	28
2.2.2.2.- Destilación oxidativa previa a la medida (PL-77, LARUEX).	28
2.2.2.3.- Concentración electrolítica (PL-78, LARUEX).	29
2.3.- Análisis de la evolución espacial y temporal de la concentración de tritio en la atmósfera. Correlaciones con otras variables.	31
2.3.1.- Resultados de los niveles de tritio en la atmósfera de una zona exenta de término fuente artificial.	32
2.3.2.- Resultados de los niveles de tritio en la atmósfera de una zona con aporte antropogénico o artificial de tritio (entorno de la Central Nuclear de Almaraz).	42
2.4.- Conclusiones.	62
<b>3.- RADIONUCLEIDOS DE ORIGEN COSMOGÉNICO PRESENTES EN LOS AEROSOLIOS DE LA ATMÓSFERA DE CÁCERES</b>	65
3.1.- Introducción.	66
3.2.- Recolección de aerosoles mediante bomba de alto volumen ASS-500C.	68
3.3.- Preparación de muestras.	70

3.3.1.- Espectrometría $\gamma$ .	71
3.3.2.- Separación radioquímica para la extracción de $^{10}\text{Be}$ .	74
3.4.- Análisis del contenido de radionucleidos cosmogénicos.	75
3.4.1.- $^7\text{Be}$ .	75
3.4.2.- $^{10}\text{Be}$ .	83
3.4.3.- $^{22}\text{Na}$ .	87
3.5.- Modelización y predicción.	90
3.5.1.- Modelización de la evolución temporal del $^7\text{Be}$ y $^{22}\text{Na}$ .	91
3.5.2.- Capacidad predictiva del comportamiento normal del contenido de $^7\text{Be}$ y $^{22}\text{Na}$ en la atmósfera de Cáceres.	100
3.6.- Conclusiones.	104

<b>4.- RADIONUCLEIDOS DE ORIGEN PRIMORDIAL Y ANTROPOGÉNICO PRESENTES EN LOS AEROSOLES DE LA ATMÓSFERA DE CÁCERES</b>	105
4.1.- Introducción.	106
4.2.- Preparación de muestras.	106
4.2.1.- Separación radioquímica de emisores $\alpha$ .	106
4.2.2.- Separación radioquímica de $^{90}\text{Sr}$ .	108
4.3.- Análisis del contenido de radionucleidos de origen primordial y natural.	109
4.3.1.- $^{40}\text{K}$ .	109
4.3.2.- $^{210}\text{Pb}$ .	111
4.3.3.- U, Ra y Th.	114
4.4.- Análisis del contenido de radionucleidos de origen artificial.	117
4.4.1.- $^{137}\text{Cs}$ .	117
4.4.2.- $^{90}\text{Sr}$ .	120
4.4.3.- $^{239+240}\text{Pu}$ y $^{241}\text{Am}$ .	121
4.5.- Modelización y predicción.	122
4.5.1.- Modelización de la evolución temporal del $^{40}\text{K}$ y $^{210}\text{Pb}$ .	122
4.5.2.- Capacidad predictiva del comportamiento normal del contenido de $^{40}\text{K}$ , $^{210}\text{Pb}$ y $^{137}\text{Cs}$ en la atmósfera de Cáceres.	130
4.6.- Estimación de la dosis efectiva por inhalación.	132
4.7.- Conclusiones.	135

<b>5.- APLICACIÓN: ANÁLISIS DEL IMPACTO EN LA ATMÓSFERA DE CÁCERES DEL ACCIDENTE DE LA CENTRAL NUCLEAR DE FUKUSHIMA</b>	139
5.1.- Introducción.	140
5.2.- Alteración de la metodología de muestreo.	144
5.3.- Impacto radiológico en los aerosoles.	147
5.3.1.- Aerosoles atmosféricos.	147
5.3.2.- Otros tipos de muestras atmosféricas analizadas.	158
5.4.- Conclusiones.	159
<b>6.- BIBLIOGRAFÍA</b>	161
<b>7.- ANEXOS</b>	175
Anexo I. Datos Meteorológicos de Cáceres (AEMET)	176
Anexo II. Productos volátiles más importantes de la fisión de un reactor de 3000 MWth	177



# Capítulo 1

## INTRODUCCIÓN

En todas las partes de nuestro planeta y en todos los organismos vivos que en él se desarrollan, existen materiales radiactivos que emiten radiaciones ionizantes. Así, a finales del siglo XIX y principios del XX se producen una serie de descubrimientos que suponen el inicio en el estudio de la física de dichas radiaciones:

En 1895 W.C. Röntgen, mientras se encontraba realizando un estudio sobre los rayos catódicos en un tubo de descarga gaseosa de alto voltaje, descubre los rayos X, radiación que presenta unas propiedades desconocidas hasta ese momento.

En 1896 H. Becquerel detecta, de forma totalmente fortuita, que las sales de uranio emiten una serie de radiaciones similares a los rayos X, es decir, se trataba de una radiación muy penetrante, que velaba placas fotográficas y provocaban la ionización de la materia con la que interaccionaba. Este descubrimiento accidental de la radiactividad por Becquerel, supuso el inicio del estudio de los núcleos atómicos y constituyó la primera etapa en el conocimiento de la estructura nuclear.

En 1897 J.J. Thompson, realizando sus estudios sobre flujos de partículas en la conducción de electricidad a través de los gases, confirma el carácter corpuscular de los rayos catódicos (electrones).

En 1898 Madame Curie junto a su marido, buscando nuevos elementos capaces de emitir radiación, descubren el polonio y el radio, observando en ellos, efectos radiactivos varios órdenes de magnitud más intensos que los que presentaban las sales de Uranio.

En 1900 M. Planck, al estudiar el comportamiento de un cuerpo negro, introduce la idea de la existencia de cuantos de radiación, desarrollando a partir de estos momentos sus primeros trabajos sobre teoría cuántica.

Desde el principio se tuvo el conocimiento de que este tipo de radiaciones ioniza la materia con la que interacciona; por lo que tras años de investigación se encontró que los radionucleidos emiten uno o varios tipos de radiaciones que se distinguen por su poder de penetración:

- a) radiación alfa ( $\alpha$ ): son absorbidas por una hoja de papel
- b) radiación beta ( $\beta$ ): se necesitan algunos milímetros de plomo para absorberlas
- c) radiación gamma ( $\gamma$ ): es la de mayor poder de penetración, pueden atravesar espesores de varios centímetros de plomo.

Además de los radionucleidos naturales, posteriormente, desde la década de 1940, se han ido desarrollando paulatinamente tecnologías con las que crear

nuevos radionucleidos no existentes en la naturaleza o artificiales y, que presentaban fenómenos básicamente idénticos a los naturales. Así pues la radiactividad presenta un doble origen: natural y artificial o antropogénica.

La utilización de estas fuentes ionizantes (radionucleidos tanto naturales como artificiales), ha reportado numerosos beneficios en actividades tales como la medicina, agricultura, industria, etc., pero sus riesgos no se limitan a las personas profesionalmente expuestas, sino que se extienden a toda la población. Por ello, con el fin de prevenir la aparición de efectos deterministas perjudiciales y limitar la probabilidad de incidencia de efectos aleatorios hasta valores considerados como aceptables, se redacta y publica la Normativa Europea sobre el uso de la energía nuclear (Arts. 35 y 36 del Tratado EURATOM), por la que se obliga a los países de la Unión Europea a incorporar a su legislación las normas y directrices sobre protección radiológica.

Así, en España el organismo competente en materia de Seguridad Nuclear y Protección Radiológica es el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN). Con el fin de cumplir los compromisos adquiridos por el Tratado EURATOM, el CSN dispone de unas Redes de Vigilancia Radiológica (REA: Red de Estaciones Automáticas y REM: Red de Estaciones de Muestreo), de características complementarias entre si, en las que se determinan las actividades alfa total, beta total y de emisores beta-gamma en muestras de aire, agua y suelos, a través de laboratorios asociados al CSN. Estas redes de ámbito nacional, juntos con los Programas de Vigilancia Radiológica Ambiental (PVRA) implantados en las zonas de influencia de instalaciones nucleares, constituyen el denominado programa REVIRA (Redes de Vigilancia Radiológica Ambiental).

### **1.1.- Interés del Trabajo:**

Como se mencionó anteriormente, uno de los medios en donde se debe realizar un control de los niveles existentes de radiactividad ambiental es el aire, al ser éste un medio receptor de gran interés radiológico, donde los radionucleidos presentes pueden ser transportados a muy largas distancias, para su posterior incorporación a otros ecosistemas. De hecho se han realizado numerosos estudios de algunos radionucleidos naturales presentes en la atmósfera ( $^7\text{Be}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ , etc.) englobando un amplio rango de aplicaciones interesantes tales como: trazadores para entender el transporte e intercambio de las masas de aire y materiales atmosféricos (Brost and Chatfield, 1989; Jacob et al., 1997), la velocidad de deposición de aerosoles

(Dueñas et al., 2005), o los tiempos de residencia en la troposfera (Baskaran and Sha, 2001; Dueñas et al., 2004).

Hasta el inicio de este estudio, el intento de caracterización radiológica de una posible contaminación atmosférica en puntos seleccionados de la Comunidad Autónoma de Extremadura se ha venido realizando, en el Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Extremadura (LARUEX), en base al estudio del contenido radiactivo en las muestras de aerosoles recolectadas con bombas de bajo flujo, dentro de los distintos programas de radiovigilancia en vigor, tales como el REM (Red de Estaciones de Muestreo) promovido por el Consejo de Seguridad Nuclear, y el de Vigilancia Radiológica Ambiental promovido por la correspondiente Consejería del Gobierno de Extremadura. Dado que, al ser el objetivo fundamental de ambos programas la protección radiológica de la población existente en los entornos estudiados, los volúmenes y métodos de recolección de muestras son mucho menos exigentes que los que se proponen en el presente trabajo.

Dichos programas poseen, pues, el inconveniente de no poder cuantificar actividades netas para radionucleidos, principalmente artificiales, que normalmente presentan una menor concentración atmosférica (p. ej.:  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ , entre otros). Mientras que para realizar un estudio de la dinámica de los mismos, es preciso determinar sus niveles de actividad, disminuyendo significativamente las correspondientes Actividades Mínimas Detectables (AMD). Esto se consigue, en primer lugar, aumentando el volumen de la muestra, mediante la recolección de aerosoles con una bomba de alto flujo, que permite recolectar semanalmente las partículas de polvo contenidas en unos  $100000\text{ m}^3$  de aire, en lugar de los  $400\text{ m}^3/\text{semana}$  que se obtienen en los programas anteriormente citados. Por lo tanto, la utilización de una bomba de alto flujo permitirá efectuar una cuantificación, entre otros de los antes citados radionucleidos, así como evaluar la influencia que diversas actividades industriales tienen en la calidad radiológica del aire. Así mismo, serán accesibles, entre otros, radionucleidos de origen natural como  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ; también detectados mediante el uso de bombas de bajo flujo, pero con unas actividades mínimas detectables muy inferiores a las obtenidas en éstas últimas. El estudio de algunos de los mencionados radionucleidos, son sumamente útiles para conocer las peculiaridades de la dinámica atmosférica local y comprobar y en su caso mejorar, los modelos existentes sobre los procesos de circulación global, sobre la deposición y el transporte de contaminantes ambientales.

En segundo lugar, y con el fin de realizar un estudio completo de los radionucleidos presente en la atmósfera, se ha llevado a cabo la puesta en funcionamiento de colectores específicos para detectar la presencia de tritio ( $^3\text{H}$ ) en la misma, al formar éste, normalmente parte del disolvente (vapor de agua existente en la atmósfera) y no de los solutos, o aerosoles, presentes en la misma.

Por lo que respecta al  $^3\text{H}$ , éste tiene un doble origen en la atmósfera, cosmogénico y artificial, pudiendo encontrarse en diversas formas químicas, p. ej.: gas (HT), o vapor de agua (HTO) e incluso en forma de compuestos orgánicos tritiados (fundamentalmente,  $\text{CH}_3\text{T}$ ) en la fase vapor o asociados a partículas. Estos últimos aparecen sólo ocasionalmente en ciertos ambientes. En nuestra Comunidad Autónoma el LARUEX es, hasta donde conocemos, el único grupo de investigación dedicado a realizar estudios sobre la dinámica de este radionucleido en diversos medios, los cuales nos han permitido estudiar en particular, su distribución y evolución espacial y temporal en las aguas del río Tajo. El objetivo planteado con el equipo de recolección de tritio atmosférico es lograr un avance importante en dichos trabajos de investigación, al poder profundizar en su comportamiento en un nuevo medio de estudio, como es la atmósfera, cuyos niveles de  $^3\text{H}$  tan sólo conocíamos indirectamente, a partir de su presencia en las precipitaciones.

Además, como las concentraciones de radionucleidos en aire, sobre todos los de origen natural, presentan un fuerte grado de dependencia con las condiciones climáticas de su entorno, se han obtenido datos sobre diversas variables meteorológicas en el área objeto de estudio, con el fin de efectuar un análisis conjunto de éstas con las evoluciones temporales de los radionucleidos estudiados; lo cual permitirá comprobar la existencia o no de correlaciones que afecten a las características radiológicas de la presencia radiactiva atmosférica y, que pueden dominar su dinámica.

### **1.2.- Antecedentes y desarrollo actual del tema:**

La preocupación por la preservación del Medio Ambiente se ha convertido en un tema de especial importancia en la sociedad actual. Dentro de este ámbito, la contaminación atmosférica juega un papel muy importante en el desarrollo de las actividades de investigación científica actuales.

Así, según la ley 38/1972 de Protección del Medio Ambiente Atmosférico, actualmente en vigor, se entiende por contaminación atmosférica: *“La presencia en el aire de materias peligrosas o formas de energía que impliquen riesgo, daño o molestia grave para las personas y bienes de cualquier naturaleza”*.

Por ello, y dado que la atmósfera es una gran medio receptor, desde el punto de vista del tema que nos ocupa, posee un gran interés radiológico, ya que los radionucleidos pueden ser transportados largas distancias y ser depositados en otros medios. Por ello, el artículo 35 y 36 de la Normativa Europea sobre el uso de la Energía Nuclear, identifica a la atmósfera como uno de los medios en los cuales se debe realizar un control de la presencia de radiactividad ambiental.

Los radionucleidos presentes en la atmósfera tienen diversas procedencias, algunas de las cuales son naturales y otras antropogénicas. Las primeras se pueden clasificar como debidas:

- a) a la acción del clima sobre la litosfera y las condiciones medioambientales, por las que se introducen en la atmósfera radionucleidos pertenecientes a las series naturales, fundamentalmente radón y sus descendientes, y
- b) a la acción de la radiación cósmica que incide sobre la atmósfera de nuestro planeta, que genera radionucleidos de vida relativamente corta, como el  $^7\text{Be}$  o  $^{22}\text{Na}$ , u otros mucho más longevos, como el  $^{10}\text{Be}$ .

Por su parte, las fuentes antropogénicas de radionucleidos son debidas:

- a) a las pruebas con armas nucleares (global fallout). Obviamente, no puede olvidarse el interés militar que la energía nuclear despertó en su día para crear las bombas atómicas y que, como consecuencia de la llamada "guerra fría" y la política de intimidación seguida por los Estados Unidos de América, la URSS, el Reino Unido, Francia y China, realizaron entre los años 1945 y 1975. En estos años se realizaron un total de 398 explosiones nucleares atmosféricas, como consecuencia de las cuales todo el planeta incorporó en mayor o menor medida, nuevos isótopos radiactivos artificiales, o contaminación radiactiva
- b) a la utilización con fines energéticos, médicos o de investigación, de instalaciones nucleares o radiactivas. Éstas, de forma controlada en su funcionamiento rutinario, o incontrolada (véase a modo de ejemplo los accidentes de la central nuclear de Chernobyl y más recientemente de Fukushima) pueden liberar cantidades que pueden llegar a ser importantes de radionucleidos artificiales, entre otros ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ , etc.),
- c) al uso de otro tipo de instalaciones no nucleares, como las actividades calificables NORM. En tal sentido pueden citarse a modo de ejemplo las fábricas de fertilizantes, determinadas actividades mineras o las centrales

térmicas de carbón, que debido a su *modus operandi* pueden aumentar, en la atmósfera de su entorno, a veces de manera considerable la presencia de radionucleidos de origen natural (uranio, torio, radio, etc.), y

Por último, cabe destacar la existencia de radionucleidos con un doble origen, natural y artificial como el tritio,  $^3\text{H}$ , que se trata de un radionucleido emisor  $\beta$  puro. Así, por una parte, es generado en la cronosfera de las estrellas, en las capas altas de la atmósfera (por interacción de la radiación cósmica con nitrógeno y oxígeno), e incluso en muy pequeña proporción en la capa superior del suelo (por reacciones de captura neutrónica) (Kaufman et al., 1954), y, por otra parte, es generado en actividades humanas, tales como la industria armamentística, la industria nucleoelectrónica, las actividades sanitarias, etc. Se trata de radioisótopos de muy baja radiotoxicidad, pero su presencia en las moléculas de agua implica que este radionucleido se distribuye en el planeta siguiendo la dinámica del ciclo hidrológico, incluidos los seres vivos (que lo incorporan a través de la cadena trófica, así como por inhalación o por absorción a través de la piel). Por ello, resulta de gran interés el conocer las pautas de su distribución, especialmente en las regiones en donde éste pueda ser más abundante.

En el caso de la Comunidad Autónoma de Extremadura, junto al tritio de origen natural, se pueden encontrar cantidades relativamente importantes de este radionucleido debido a las emisiones líquidas y gaseosas de la Central Nuclear de Almaraz (CNA), así como al aporte de tritio preexistente en las aguas del río Tajo cuando ingresan en la provincia de Cáceres, tras haber recibido efluentes procedentes de hospitales de las grandes ciudades y de otras centrales nucleares de la cuenca del Tajo (CSN, 2003; García Delgado E., 2000).

Debido a sus distintos orígenes, la concentración de radionucleidos presentes en cada área dependerá, en general, de las condiciones climáticas y del tipo de actividades desarrolladas en las mismas.

Para satisfacer el objetivo planteado en este estudio, la presente memoria se estructura en cuatro capítulos, dedicándose el capítulo 2 al estudio del tritio presente en diferentes tipos de muestras y, en dos entornos claramente diferenciados (con y sin aporte antropogénico o artificial de tritio), con el propósito de, por un lado determinar los niveles de actividad del tritio en las mismas y, por otro lado, analizar su evolución espacial y temporal mediante la correlación y modelización de dichos valores con otras variables, con el fin último de valorar el impacto que en la zona

afectada por un aporte antropogénico del mismo, se ejerce sobre la vía aérea de su entorno.

En el capítulo 3 y 4 se analizarán las estructuras temporales de los niveles de actividad tanto de los radionucleidos de origen cosmogénico ( $^7,^{10}\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$ ) como los de origen natural ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{234,238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  y  $^{228,230,232}\text{Th}$ ) y antropogénicos ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  y  $^{241}\text{Am}$ ) presentes en la atmósfera de Cáceres, así como sus correlaciones con diversas variables meteorológicas para, posteriormente ajustarlas a modelos de regresión múltiple, que permitan identificar y cuantificar los mecanismos de producción y eliminación de los mismos en la atmósfera. Además, se han ajustado mediante el análisis de series temporales a modelos estacionales simples, que nos permitan realizar predicciones futuras de los niveles de actividad de los mismos y, detectar así posibles incidencias sobre las evoluciones temporales calificables de normales en los mismos. Por último, en el capítulo 4, se determinará a través de las concentraciones de los radionucleidos estudiados, el impacto radiológico a la población en general, a partir de la estimación de la dosis efectiva por inhalación.

Para finalizar, en el capítulo 5 se pondrá de manifiesto la enorme sensibilidad que poseen las determinaciones del contenido radiactivo efectuadas sobre muestras de aerosoles recolectadas con el captador de aerosoles de alto flujo que dispone el LARUEX; al poder detectar radionucleidos artificiales ante una situación de contaminación radiactiva atmosférica real como el accidente de la central nuclear de Fukushima; algunos con una vida media tan corta (como  $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{136}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{132}\text{Te}$  y  $^{132}\text{I}$ ) y, con unas actividades netas calificables de despreciables al encontrarse órdenes de magnitud por debajo de los niveles de notificación obligatoria al Consejo de Seguridad Nuclear.

## **Capítulo 2**

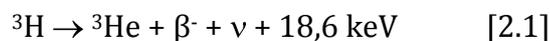
# **TRITIO EN LA ATMÓSFERA**

## 2.1.- Introducción:

Uno de los radionucleidos presentes en la atmósfera es el tritio ( $^3\text{H}$ ), al formar éste prioritariamente parte del vapor de agua, más que de los solutos presentes en la misma. Tiene un doble origen en la atmósfera (natural y artificial o antropogénico); los cuales se detallan con brevedad a continuación.

### 2.1.1.- Orígenes del tritio:

El tritio fue descubierto en 1939 por Álvarez y Cornog, en un concentrado electrolítico de agua pesada (Libby, 1975). Se trata de un emisor  $\beta$  puro, con un período de semidesintegración de 12,33 años, cuya desactivación se produce según la reacción:

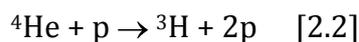


La energía de emisión presentada en la ecuación [2.1], de 18,6 keV, es la máxima posible, siendo su energía media de 5,685 keV (NCR, 1985).

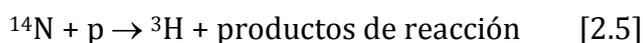
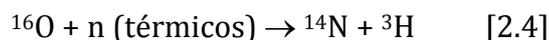
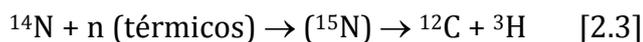
Por lo que respecta a su origen, y como se ha mencionado anteriormente, éste es doble, como se describe a continuación:

#### 1) Origen natural:

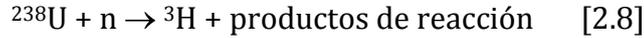
- a) En la cromosfera de la estrellas se produce tritio a partir de helio. En particular, este radionucleido se emite durante las protuberancias solares intensas, alcanzando dicha emanación un ritmo de unos 0,12 átomos/( $\text{cm}^2 \cdot \text{s}$ ) de superficie solar (Díaz, 1991). La reacción mediante la cual se genera el tritio estelar es:



- b) En las capas altas de la atmósfera, el nitrógeno y el oxígeno reaccionan con la radiación cósmica primaria, generando tritio a un ritmo medio de 840 átomos/( $\text{m}^2 \cdot \text{s}$ ) en la troposfera y de unos 2500 átomos/( $\text{m}^2 \cdot \text{s}$ ) en toda la atmósfera (UNSCEAR, 1982), de acuerdo con las siguientes reacciones (Kaufman et al., 1954):



- c) En el suelo se producen pequeñas cantidades de tritio debidas a reacciones de captura electrónica experimentadas por el  ${}^6\text{Li}$  y por el  ${}^{238}\text{U}$  (Kaufman et al., 1954):



## 2) Origen artificial:

- a) Emisión de tritio en las explosiones termonucleares atmosféricas, habidas principalmente en la década comprendida entre 1952-1962, cuyas inyecciones de tritio a la atmósfera superaron entre 185 a 240 veces la cantidad de tritio de origen natural (UNSCEAR, 1977), llegando a ser de unos  $240 \cdot 10^{18}$  Bq el tritio total emitido en dichas experiencias bélicas (UNSCEAR, 1982)
- b) La industria de producción nucleoelectrica en su funcionamiento normal genera cantidades importantes de tritio, siendo de unos  $0,59 \cdot 10^{18}$  Bq la emisión anual total de este radionucleido, debido tanto a la fisión ternaria, como a la activación del deuterio (UNSCEAR, 1988). Así mismo, la industria nucleoelectrica, ha originado un detectable aumento de la tasa de dosis recibida en el hemisferio norte debida al tritio, habiéndose estimado dicho incremento en un ascenso desde unos  $0,001 \mu\text{Sv/año}$  hasta  $0,1 \mu\text{Sv/año}$  entre los años 1970 y 2000 (NCR, 1979).

En este sentido, en el caso de la Comunidad Autónoma de Extremadura, se puede encontrar cantidades relativamente importantes de este radionucleido, debido a las emisiones líquidas y gaseosas de la Central Nuclear de Almaraz (CNA). La CNA consta de dos reactores de tipo PWR (agua ligera a presión), cada uno de ellos con tres circuitos de refrigeración y con una potencia eléctrica de 1035,27 MW y de 1044,45 MW, respectivamente. En las figuras 2.1 y 2.2, se muestran las evoluciones de las actividades promedio de tritio en los efluentes líquidos y gaseosos, respectivamente, para: la CNA, el resto de las centrales nucleares españolas, de la Unión Europea (UE) y de USA (CSN, 1999).

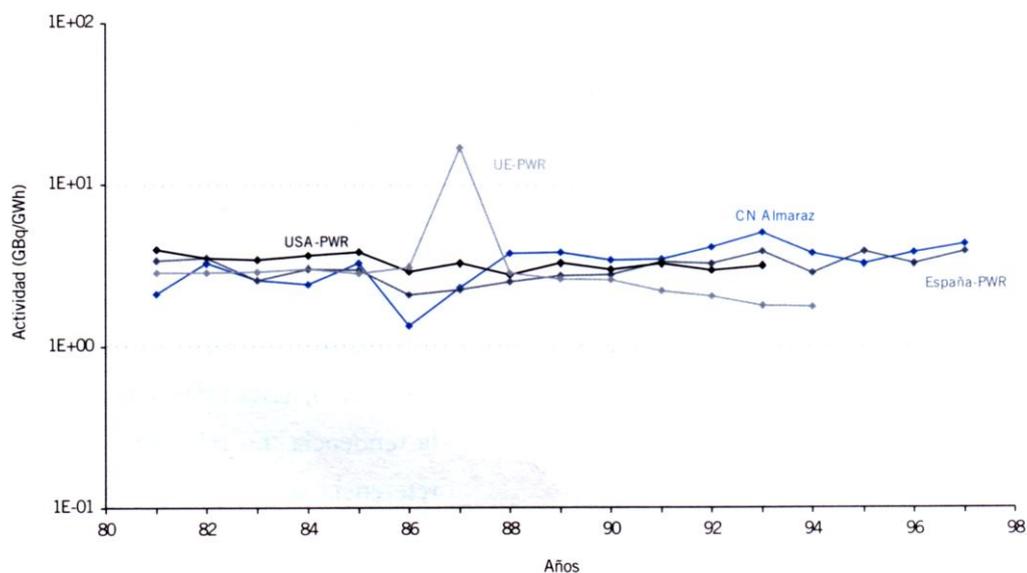


Figura 2.1. Actividad promedio de tritio en los efluentes líquidos en la CNA, resto de las centrales españolas (España-PWR), europeas (UE-PWR) y de USA (USA-PWR) (CSN, 1999).

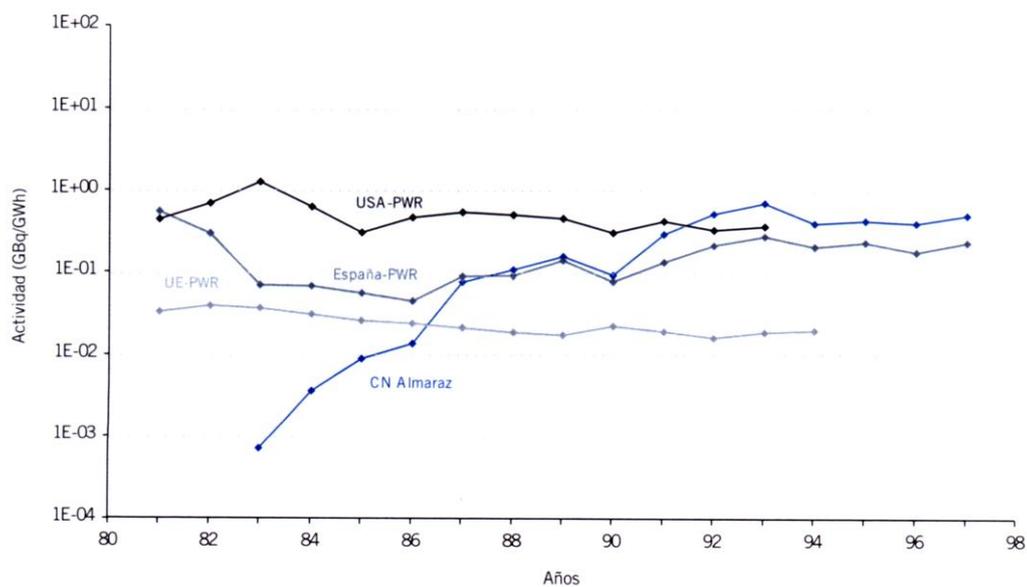


Figura 2.2. Actividad promedio de tritio en los efluentes gaseosos en la CNA, resto de las centrales españolas (España-PWR), europeas (UE-PWR) y de USA (USA-PWR) (CSN, 1999).

Como se observa en la figura 2.1., la actividad de tritio en los efluentes líquidos para las centrales nucleares mencionadas (tipo PWR) presentan una evolución muy estable a lo largo de los años, siendo todos los valores muy similares, a excepción de los de la UE en el año 1987, debido a los vertidos efectuados durante ese año por la central nuclear de Trino (Italia), que aumentaron en dos órdenes de magnitud en relación con los valores habituales en los restantes años. En el caso de la CNA (con una actividad promedio de tritio de 3,26 GBq/GWh), se observa una ligera tendencia creciente en los valores de actividad promedio de tritio evacuado, siendo éstos próximos al resto de las centrales nucleares y, ligeramente superiores a partir del año 1988.

Por otro lado, la actividad promedio de tritio en los efluentes gaseosos (figura 2.2.) de estas centrales nucleares se mantiene bastante estable para las centrales de la UE y USA, a excepción de los niveles registrados en 1983 para éstas últimas, momento en que se produce un incremento atribuido a los vertidos de las centrales de Salem 1-2 y Sequoyah 1-2. Para las centrales de España, se produce una disminución progresiva entre los años 1980-1983 y con una ligera tendencia creciente con posterioridad a estos años. Cabe destacar la tendencia creciente en los valores de actividad promedio de tritio en los efluentes gaseosos de la CNA (con una actividad promedio de tritio de  $2,47 \cdot 10^{-1}$  GBq/GWh) desde su puesta en funcionamiento hasta 1994, momento en el que éstos se estabilizan. Los valores de actividad de tritio en la UE son los más bajos de los cuatro grupos, siendo de hasta un orden de magnitud inferiores a los de USA. Los valores de los efluentes del resto de las centrales nucleares de España y la central nuclear de Almaraz son similares a los de las existentes en USA.

Así mismo, las plantas de reprocesamiento de combustible nuclear pueden producir cantidades de tritio similares a los reactores de agua pesada (UNSCEAR, 1988). En cuanto a la tecnología de fusión, aún no desarrollada totalmente, se hicieron previsiones por parte de la IAEA sobre su aportación al inventario total de tritio, estimada en  $10^{18}$  Bq por cada central de 1,2 Gw (IAEA, 1990). Por otra parte, se han producido diversos tipos de accidentes en la historia de la industria nucleoelectrónica, tales como el de Chernobyl, que aunque incrementaron temporalmente el inventario de tritio evacuado, comparada con la

emisión de otros radionucleidos, este aumento de actividad fue relativamente muy pequeña (Okada et al., 1993)

- c) Determinados productos de consumo, como los de carácter luminiscente, son también responsables de la existencia de tritio artificial en nuestro planeta, estimándose en  $0,4 \cdot 10^{18}$  Bq la cantidad anual de tritio generada (Brown, 1989).

### **2.1.2.- Importancia del tritio en la naturaleza. Ciclo hidrológico:**

Independientemente de su origen, en cuanto a su carácter químico el tritio puede encontrarse principalmente bajo las formas de vapor de agua (HTO y T<sub>2</sub>O) y en forma gaseosa (HT y T<sub>2</sub>), siendo varios los procesos que transforman el primero en el segundo: oxidación en aire, suelo, plantas o mediante el intercambio con agua (Díaz, 1991; Okada et al., 1993). El período de transformación de HT en HTO es de unos 6,5 años (Díaz, 1991).

Este HTO se distribuye en el planeta formando parte del ciclo hidrológico, por lo que pueden incorporarlo los seres vivos por las diferentes vías que les aportan agua: ingesta de alimentos y de agua, respiración de vapor de agua y absorción de éste a través de la piel. Por todo ello, resulta de un enorme interés el estudio de la transferencia de este radionucleido a diversas especies que abundan en ecosistemas acuáticos (peces, plantas, etc.) próximos a instalaciones nucleoelectricas; lo cual ha permitido utilizar el tritio como bioindicador en programas de vigilancia radiológica ambiental, así como para determinar la dinámica de la transferencia de diversos radionucleidos en los citados ecosistemas (Baeza et al., 2009). Tras una incorporación puntual, el metabolismo logra una rápida distribución del agua en el organismo, de forma que en unas 2,5 horas se homogeniza la concentración de tritio en los tejidos (Barrachina, 1985), para eliminarse paulatinamente con posterioridad, estimándose en unos 9,7 días el período de residencia biológico (NCR, 1979), de acuerdo con la tasa de renovación del agua en el organismo, que es de unos 3 L/día, de los 42 L totales que contiene el hombre estándar (Barrachina, 1985).

El tritio está considerado como un isótopo de baja radiotoxicidad (BOE, 2001), y su contribución a la dosis colectiva de una población mundial es del orden de  $10^{-4}$  veces la que se atribuye al fondo radiactivo natural (UNSCEAR, 1982). En cuanto a las formas químicas en las que se puede encontrar a éste, el HTO debido a su presencia en las moléculas de agua y, por ende en el ciclo hidrológico, resulta ser unas 25000 veces más radiotóxico para el hombre, que el tritio en la forma HT (ICR, 1978). Por todo ello, su presencia en los seres vivos tiene sobre éstos repercusiones diversas que

se han estimado, por ejemplo, en los ratones, en los que se ha detectado alteraciones del proceso hematopoyético, malformaciones genéticas o procesos cancerígenos en exposiciones intensas (Okada et al., 1993; Matsudaira, 1986). No obstante lo anterior, generalmente sus efectos sobre los seres vivos son difíciles de conocer, por lo que existen diversos tipos de estudios destinados a estimar su factor de calidad (Okada, 1986).

Por otra parte, el estudio de la presencia del tritio en aguas no sólo es interesante por el potencial perjuicio que puede causar sobre los seres vivos que en ellas habitan. De hecho, la dualidad de sus orígenes lo hace prácticamente omnipresente en todo el planeta. Por este motivo, debido fundamentalmente a su componente artificial, ha sido de gran utilidad en numerosos estudios sobre la dinámica de fluidos en diversos sistemas físicos, gracias a sus propiedades como trazador en los mismos. En concreto, el agua tritiada resulta hidrodinámicamente indistinguible de la no tritiada, por lo que en un sistema natural ambas están sujetas a los mismos procesos físicos, característica ésta que ha permitido realizar valiosas investigaciones sobre el comportamiento de corrientes marinas, flujos subterráneos, evoluciones radiactivas en ríos, etc. (Baonza et al., 1979; Fontes, 1983; Fontes, 1983b; García, 2000).

Como consecuencia de lo anterior, desde el punto de vista de la protección radiológica, las normativas existentes establecen la realización de controles sobre su presencia en determinados medios, así como la estimación periódica de las dosis y tasas de dosis que el ser humano puede incorporar por las distintas vías posibles.

En España los Planes de Vigilancia Radiológica Ambiental, supervisados normalmente, por el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), realizan un control exhaustivo de entre otros, las emisiones de tritio en zonas próximas a diversos tipos de términos fuente, fundamentalmente en el entorno de las centrales nucleares. Así, en el caso concreto de la Comunidad Autónoma de Extremadura, el LARUEX lo desarrolla en torno a la CNA, que junto con la información que aporta la Red de Alerta Radiológica (RARE), gestionada por éste y dependiente a partes iguales del Gobierno de Extremadura y del Consejo de Seguridad Nuclear, proporciona una valiosa información a partir de la cual se puede calibrar la influencia que el funcionamiento de dicha instalación nuclear ejerce sobre los distintos medios receptores existentes en su entorno (Baeza et al., 1991), (CSN, 1988-1994).

Así, aún cuando desde el punto de vista de la protección radiológica, el control del impacto que los efluentes de la citada instalación nucleoelectrica ejercen sobre su

entorno, se valora en base al desarrollo de estos Programas de Vigilancia Radiológica Ambiental, dichos programas no poseen la amplitud necesaria para evaluar la evolución espacio-temporal de los niveles de actividad del tritio en todos los medios receptores de su entorno, como es el caso del tritio atmosférico.

### **2.1.3.- Objetivos del estudio:**

Por todo ello, el objetivo principal de este capítulo es valorar el impacto que la CNA ejerce sobre la vía aérea de su entorno, por lo que a la evacuación de tritio se refiere, a partir del estudio comparativo de los niveles de tritio en la atmósfera (HTO fundamentalmente) y en las precipitaciones, ambas relacionadas entre sí.

Para ello, se ha seleccionado los siguientes puntos de muestreo en base a la previsible influencia o no, que ejercen sobre ellos la CNA.

- a) En el entorno de la Central Nuclear de Almaraz. Se han escogido para tal fin varios puntos de muestreo, en el que los niveles de actividad de tritio estarán asociados tanto a su origen natural (gobernado fundamentalmente por las condiciones meteorológicas del entorno), como artificial (debido tanto a los restos del fallout global, como a las emisiones de tritio en los efluentes líquidos y gaseosos de la CNA).
- Almaraz: el punto de muestreo está ubicado en el ayuntamiento de la localidad de Almaraz (39º 48' 58" N; 5º 40' 31" O), Cáceres, sita a una distancia de 1,7 km de la CNA, en dirección E-NE con respecto a ésta.
- Serrejón: el muestreo se realiza en la estación de la RARE que gestiona el LARUEX, ubicada en la localidad de Serrejón (39º 49' 07" N; 5º 47' 58" O), Cáceres, sita a una distancia de 8,6 km de la CNA, en dirección O-NO y, en la dirección opuesta a la localidad de Almaraz.
- Arroyo Arrocampo: se encuentra en la cola del embalse de Arrocampo (embalse de refrigeración de la CNA) (39º 50' 18" N; 5º 40' 33" O), en las proximidades de la carretera comarcal que une las localidades de Almaraz y Saucedilla, situado a una distancia de 3,95 km de la CNA, en dirección E-NE de ésta.
- Presa Arrocampo: se encuentra en el embalse de Torrejón-Tajo, próximo al punto en que se produce el vertido de agua a dicho embalse procedente del de Arrocampo (39º 46' 28" N; 5º 44' 30" O), situado a una distancia de 4,46 km de la CNA, en dirección O-SO respecto a ésta.

En el caso de las descargas de los efluentes líquidos de la CNA al medio ambiente, éstos tienen lugar a través de su sistema de refrigeración, el embalse de Arrocampo, en el cual existen unos muros medianeros que lo divide en dos partes y, por el que se hace circular de manera forzada el agua a lo largo de todo el embalse. La finalidad de esta recirculación del agua a lo largo de dicho embalse de Arrocampo, se halla en la necesidad de refrigeración de la Central Nuclear de Almaraz. Para ello, se requiere un salto térmico de unos 10 °C entre el agua que entra al circuito de refrigeración y la que sale de él (Bonet, 1995). Debido a ello se construyeron unos muros internos para aumentar el recorrido (hasta 25 km) del agua por el embalse de Arrocampo, de forma que esa mayor trayectoria permitiese al agua intercambiar parte de la energía térmica que posee con la atmósfera, disminuyendo así su temperatura y volviendo a estar en condiciones térmicas para su reutilización como refrigerante. Sin embargo, en los meses de verano, con esta recirculación no es suficiente para rebajar la temperatura del agua hasta valores aceptables, debiendo intercambiar parte del agua del embalse de Arrocampo con relativamente alta temperatura, con agua del río Tajo a la altura del embalse de Torrejón, relativamente más fría, provocando así un incremento térmico indeseable en el agua del embalse de Torrejón y, paralelamente de los niveles de tritio. Ambos aspectos han sido evaluados en detalle por nuestro grupo de investigación. Como solución al primero de los precitados problemas, la CNA ha construido unas torres de refrigeración (figura 2.3.) junto a su embalse actual de refrigeración, para favorecer la bajada térmica del agua del embalse de Arrocampo y, por consiguiente, para conseguir un aumento en la eficiencia energética de la central. Por este motivo, y derivado del objetivo principal de este estudio, consideramos que en estos momentos es una oportunidad única para valorar el impacto que la entrada en funcionamiento de las citadas torres de refrigeración va a suponer, como consecuencia de la inyección de nuevas cantidades de HTO que realizan sobre la atmósfera de su entorno.



**Figura 2.3. Vista de las torres de refrigeración de la CNA junto a su embalse de refrigeración (embalse de Arrocampo).**

En la figura 2.4., se representa un mapa con las localizaciones de los diferentes puntos de muestreo seleccionados en el entorno de la central nuclear de Almaraz.



**Figura 2.4. Mapa de localización de los diferentes puntos de muestreo en el entorno de la CNA.**

- b) En una localización fuera del precitado entorno, que a todos los efectos podemos considerar como un entorno exento de término fuente de tritio. Se ha seleccionado para tal fin la población de Cáceres, en concreto, el punto de muestreo elegido se encuentra en un recinto protegido perteneciente al Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Extremadura (LARUEX), situado en la Facultad de Veterinaria de la Universidad de Extremadura (39º 30' 20" N; 6º 20' 22" O) y, a una distancia de 69 km de la CNA, en dirección O-SO de ésta.

En este caso, la presencia de tritio en dicha atmósfera será debida, salvo situación accidental de impacto global, al origen natural del mismo y, por tanto, gobernada fundamentalmente por las condiciones meteorológicas de la zona, a la cual deberá adicionarse una pequeña componente de origen artificial, debido a los restos actuales del fallout global.

Además, dado que las variaciones observadas en las concentraciones de los radionucleidos cosmogénicos ( $^7\text{Be}$ ,  $^{22}\text{Na}$  y  $^3\text{H}$ ) tienen un carácter estacional, correlacionado con la precipitación y con los intercambios de aire entre distintas partes de la atmósfera (Baeza et al., 1996; El-Hussein et al., 2001, Grabowska et al., 2003; Stamoulis et al., 2005), será de gran interés llevar a cabo de manera paralela al estudio de la concentración de tritio atmosférico, el de diversas variables meteorológicas que gobiernen su dinámica, entre ellas las precipitaciones.

Así pues, el precitado objetivo global de este estudio puede desglosarse en dos:

- 1) inicialmente: realizar un análisis comparativo entre los niveles de tritio presentes en la atmósfera de Cáceres, que a todos los efectos podemos considerar como un entorno exento de término fuente artificial activo, y el de la CNA en su modo de funcionamiento hasta el verano de 2012 y, conocer y describir su evolución espacial y temporal, tratando de examinar las causas que los determinan, así como las posibles variables meteorológicas que inciden en su evolución
- 2) desde verano del 2012 (fecha en que entraron en funcionamiento las torres de refrigeración de la CNA): obtener la suficiente cantidad de información referente al tritio en este entorno, para poder evaluar el impacto radiactivo, en caso de que éste sea detectable, que sobre su atmósfera supone el nuevo modo de operar de la CNA.

De esta forma, se estará en disposición de valorar individualmente si el incremento del impacto radiactivo de los niveles de tritio debido al término fuente, torres de refrigeración de la CNA, tiene o no una repercusión significativa desde el punto de vista de la Protección Radiológica.

## **2.2.- Recogida, tratamiento y medida de las muestras:**

Para cubrir los objetivos mencionados anteriormente y una vez establecidos los diferentes entornos de estudio, y los puntos de muestreo en cada uno de ellos; puesto que lo que se pretende determinar es la actividad del tritio existente en la atmósfera, se tienen en cuenta tanto los niveles de tritio presentes en el vapor de agua de la atmósfera (HTO) como el tritio existente en las precipitaciones habidas. Además, para establecer una relación entre el tritio presente en la atmósfera en el entorno de la CNA y el tritio inyectado a la atmósfera por ésta, a través de sus efluentes líquidos y gaseosos, se analizarán paralelamente, las muestras de aguas superficiales recogidas tanto en su embalse de refrigeración, como en el punto de evacuación del citado embalse al río Tajo.

Por último, será necesario poner a punto los métodos de recolección de los diferentes tipos de muestras, así como para su tratamiento y, posterior medida y para determinar sus niveles de actividad.

### **2.2.1.- Tipos de muestras. Recogida y periodicidad de muestreo:**

Para el desarrollo del estudio planteado en este capítulo, se ha llevado a cabo la recogida de diferentes tipos de muestras, previa a la cual es necesaria la puesta a punto de diversos métodos de muestreo, así como de conservación y tratamiento de las mismas.

En este sentido, el punto crucial para llevar a cabo un correcto análisis de las muestras, así como para la posterior interpretación de los resultados obtenidos, es la correcta recogida y conservación de las mismas. Así, el procedimiento de recogida de la muestra debe garantizar al menos los siguientes aspectos:

- a) que la muestra sea representativa del medio,
- b) con las características necesarias para los análisis que en ella se pretenden realizar,
- c) con la conservación de estas propiedades hasta el momento de su tratamiento y, por último,

- d) que venga acompañada de los datos necesarios para la caracterización de la misma y la trazabilidad del proceso de muestreo.

Tomando en consideración lo anterior, antes de iniciar el proceso de toma de muestras, es necesario establecer un programa de muestreo: tipos de muestra, frecuencia y duración de recogida de las muestras, procedimientos y equipamientos necesarios.

A continuación, se describen cada uno de los puntos mencionados con anterioridad.

#### **2.2.1.1.- Vapor de agua atmosférico:**

Por lo que respecta a la detección del tritio en el vapor de agua presente en el aire, hay que destacar que la recolección de este tipo de muestras es más complejo que el llevado a cabo para otro tipo de matrices, ya que el aire no constituye una matriz estática ni estable, lo que impide no sólo hablar de su carácter representativo, sino incluso asegurar que un determinado impacto vaya a ser detectado, dependiendo entre otras cosas, de la dirección del viento en un momento determinado (CSN, 2009).

El muestreo del tritio presente en el vapor de agua de la atmósfera, en general no reviste una gran complejidad desde el punto de vista técnico, razón por la que existen diversos tipos de muestreadores para este fin en el mercado. En cualquier caso, es preciso recolectar un volumen de aire suficiente, para lo cual pueden emplearse equipos de diferente naturaleza, siendo los más habituales:

- a) Colectores pasivos, que no requieren alimentación eléctrica y recogen tritio atmosférico en forma de HTO (agua tritiada) por absorción en un material adecuado (filtros moleculares, gel de sílice), introducido en una cápsula provista de un orificio de difusión. Pueden emplearse para recoger muestras de aire en paralelo con un tipo de muestreador activo, para contrastar los resultados (Wood et al., 1993). Presentan la ventaja frente a los colectores activos con absorbentes líquidos, que el HTO no se diluye en un volumen de líquido y no requieren alimentación eléctrica. Es un equipo recomendable cuando se realizan muestreos prolongados al aire libre.
- b) Colectores activos que, a su vez, pueden ser de varios tipos:
  - b.1.) Trampa o tamiz molecular contenido en un recipiente por el que pasa aire impulsado por una bomba, de forma que el tamiz molecular retiene el vapor de agua. Posteriormente, se extrae el agua del tamiz mediante calentamiento en un horno y se recolecta en una trampa fría a  $-60^{\circ}\text{C}$ , conectada a una línea de vacío (Kimura et al., 1997).

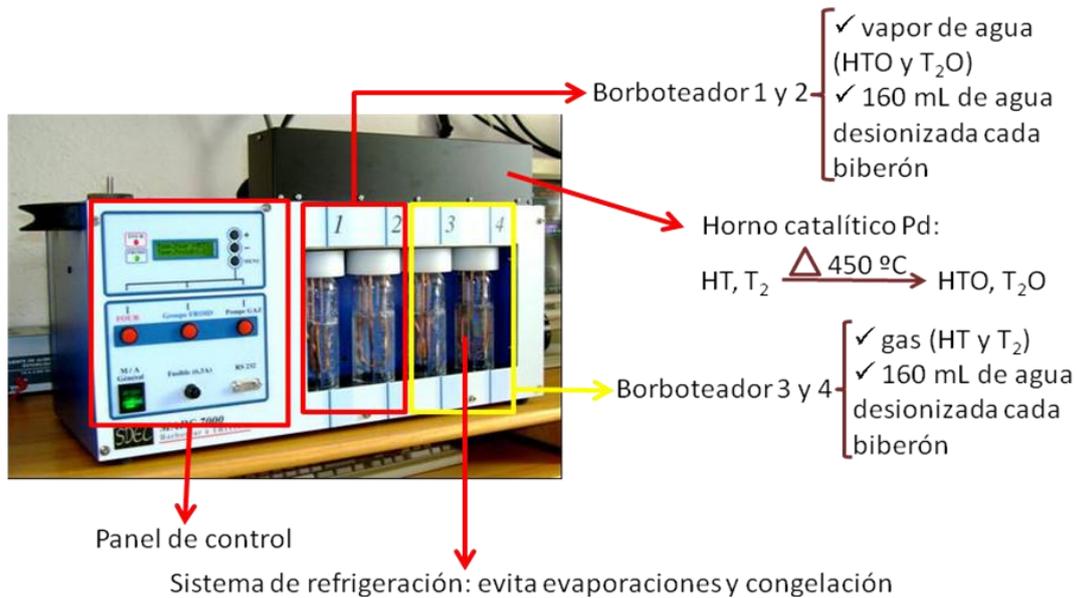
b.2) Recogida selectiva sobre alcohol o agua desmineralizada con bajo contenido en tritio, acoplada a una catálisis oxidativa que permite diferenciar entre HT y HTO. El equipo, con un flujo de aire relativamente alto, logra una recuperación de hasta un 95% del aire para flujos de unos 75cm<sup>3</sup>/min, obteniendo una buena sensibilidad en la detección de los analitos mencionados. (Shinotsuka et al., 2003). Presentan el inconveniente de la dilución de la muestra en el absorbente líquido, los equipos son más caros y requieren de un mayor mantenimiento.

En nuestro estudio se ha utilizado un colector de tritio activo (marca SDEC, modelo MARC 7000. Véase figura 2.5.), en el cual se realiza la recogida selectiva del tritio en las formas de vapor de agua (HTO) y gaseosa (HT) presentes en el aire, ambas retenidas sobre agua desmineralizada (absorbente líquido) con bajo contenido en tritio, diferenciando entre uno y otro y, con una eficacia de captación para ambos casos superior al 99% (SDEC, 2010).

Este equipo dispone de un controlador totalizador que proporciona el volumen total de aire captado, lo que permite expresar el resultado para el tritio en Bq/m<sup>3</sup> y, de otro instantáneo, que proporciona el volumen captado por unidad de tiempo; que es un parámetro a preseleccionar. Además, dispone de controladores horarios, que indican el tiempo total que ha estado en funcionamiento, detectando así posibles cortes en el suministro eléctrico, si los hubiera.

El aire aspirado pasa en primera instancia, a través de unos viales borboteadores (borboteadores 1 y 2 de la figura 2.5.) que contienen el absorbente líquido en el que queda retenido el tritio en la forma de vapor de agua (HTO). El tritio, en forma reducida (gaseosa, HT) no es retenido en estos dos primeros viales, sino que prosigue su camino, pasando a través de un horno catalítico de Pd que opera a unos 450 °C, donde éste se oxida a la forma (HTO), de forma que el tritio oxidado es posteriormente retenido en otros dos viales borboteadores (borboteadores 3 y 4 de la figura 2.5.) con el mismo absorbente líquido que en los dos primeros, quedando así separado el tritio que inicialmente estaba en la atmósfera en forma vapor de agua y gaseosa.

Además, este tipo de colector activo de tritio dispone de un sistema de acondicionamiento térmico en cada uno de los frascos borboteadores, con el fin de evitar tanto pérdidas del absorbente líquido por evaporación, como la congelación del mismo, manteniendo la temperatura de dicho absorbente líquido entre +2 °C y +15 °C.



**Figura 2.5. Colector de Tritio Atmosférico MARC 7000.**

Las condiciones de muestreo seleccionadas para este tipo de muestras se han fijado a partir de estudios previos en: muestreos continuos, con una periodicidad quincenal y con unos caudales de aspiración de 25 L/h, con el fin de asegurar que para los colectores ubicados en el entorno de la Central Nuclear de Almaraz, el tamaño de la muestra por ellos recolectada, es tal que prácticamente nos garantizan la obtención de actividades específicas superiores al AMD del procedimiento. Por otra parte, la cantidad de absorbente líquido en cada frasco borboteador se ha fijado en 160 mL, con el fin de asegurar una cantidad de muestra suficiente para poder llevar a cabo el análisis de tritio, evitar una dilución elevada de la muestra y reservar parte de la misma para posibles repeticiones en los análisis.

Por último, para simular en lo posible la incorporación durante la respiración de una persona, se han tomado las siguientes consideraciones: la toma de muestra se realiza a una altura de captación del aire de 1,5 m, alejado de obstáculos, para evitar perturbaciones en las direcciones del viento y, protegidos eléctricamente con Sistema de Alimentación Ininterrumpida (S.A.I.), para evitar en la medida de lo posible, interrupciones en el periodo de muestreo, debido a cortes en el suministro eléctrico general.

En la tabla 2.1., se presenta un resumen de las muestras recogidas para determinar el tritio atmosférico (cuadros con aspas) o no (cuadros en blanco),

durante el periodo comprendido entre 2009 y 2012. Como se aprecia en esta tabla, durante el 4º trimestre de 2009 no se colectaron muestras en las estaciones de Almaraz, así como durante dos y tres quincenas en el año 2011 en la estaciones de Almaraz y Cáceres, respectivamente, debido a averías de estos colectores. En el caso del colector de la estación de Serrejón, las muestras comenzaron a recogerse a partir de la segunda quincena de Abril de 2011, fecha a partir de la cual se dispuso del mismo.

<b>AÑO 2009</b>													
<b>Meses</b>	<b>1</b>	<b>2</b>	<b>3</b>	<b>4</b>	<b>5</b>	<b>6</b>	<b>7</b>	<b>8</b>	<b>9</b>	<b>10</b>	<b>11</b>	<b>12</b>	
<b>Almaraz</b>	NO SE DISPONE DE EQUIPO												
<b>Cáceres</b>	NO SE DISPONE DE EQUIPO												
<b>AÑO 2010</b>													
<b>Almaraz</b>													
<b>Cáceres</b>													
<b>AÑO 2011</b>													
<b>Almaraz</b>													
<b>Cáceres</b>													
<b>Serrejón</b>	NO SE DISPONE EQUIPO												
<b>AÑO 2012</b>													
<b>Almaraz</b>													
<b>Cáceres</b>													
<b>Serrejón</b>													

**Tabla 2.1. Muestras de tritio atmosférico recogidas durante el periodo comprendido entre los años 2009 y 2012 en Cáceres, Almaraz y Serrejón.**

En cuanto a la conservación y pretratamiento de las muestras, hay que destacar que cada una de ellas, una vez finalizado su periodo de recolección, son

trasvasadas, previa medida del volumen final del absorbente líquido en cada borboteador, desde los viales borboteadores a frascos de polietileno, identificados convenientemente con los datos del muestreo (periodo de muestreo, tiempo de muestreo en horas, número del vial borboteador, volumen final del absorbente líquido, volumen de aire aspirado, punto de muestreo, etc.). Dado que para la determinación del contenido en tritio en muestras acuosas no se deben acidular las muestras durante su conservación, ya que el propio ácido utilizado como conservante podría añadir a priori una cantidad desconocida de tritio a la muestra, todas las muestras se conservan refrigeradas a temperaturas inferiores a 10 °C, para evitar posibles evaporaciones.

#### **2.2.1.2. Agua de lluvia:**

Para la recolección de las muestras de agua de lluvia se dispone de unas bateas cuadradas construidas en aluminio, para evitar su posible oxidación, puesto que están situadas a la intemperie. Estas bateas tienen la base inclinada hacia su centro para evitar el estancamiento del agua. En dicho centro existe un hueco por donde se comunica la batea con un depósito para el acúmulo de las precipitaciones habidas durante el periodo de muestreo. Las dimensiones de las bateas utilizadas en los diferentes puntos de muestreo son de 0,303 y 0,624 m<sup>2</sup>, para Presa Arrocampo (ver figura 2.6) y Cáceres, respectivamente.



**Figura 2.6. Vista del colector de agua de lluvia ubicado en el entorno de la CNA (Presa Arrocampo).**

Para el caso de las muestras de agua de lluvia, los puntos de muestreo se han intentado ubicar en zonas lo más próximas posibles a los colectores de tritio atmosférico, así como establecer una periodicidad de muestreo adecuada, de modo que se pueda realizar un estudio comparativo de los niveles de tritio (presentes en la atmósfera y en la precipitación), con el fin de poder establecer posibles correlaciones entre ellos.

Para la recolección del agua de lluvia, se ha seleccionado la periodicidad de colección mensual (durante el periodo comprendido entre el año 2005 y 2012), a fin de minimizar al máximo los periodos sin muestras, manteniendo una suficiente resolución temporal. Como consecuencia, el volumen de agua de lluvia recolectada mensualmente es muy variable, dependiendo de la estación del año en que se efectúe la recolección de estas muestras. En cuanto a la conservación de este tipo de muestras, se sigue el mismo procedimiento que el detallado para las muestras de vapor de agua atmosférico.

#### **2.2.1.3. Agua superficial:**

Para caracterizar la influencia que los efluentes líquidos de la CNA ejercen en los niveles de tritio de la atmósfera de su entorno, paralelamente a las muestras de vapor de agua atmosférico y de lluvia, se han analizado muestras de aguas superficiales del entorno de la CNA (Arroyo Arrocampo y Presa Arrocampo).

Dado que los citados puntos de aguas superficiales son receptores de los efluentes líquidos de la CNA, se han utilizado para valorar la relación que puede existir entre los niveles de tritio presentes en la atmósfera del entorno de la CNA y el tritio inyectado a la misma, a través de dichos efluentes.

En cuanto a la recogida de este tipo de muestras y dada su naturaleza líquida, no habrá que tomar consideraciones especiales debido a su representatividad, puesto que éstas serán homogéneas; siempre que se tomen en zonas abiertas a corrientes y, evitando en la medida de lo posible, remansos o agua estancada. Para ello, se recogen 2 litros de agua, por cada punto de muestreo, en botes de polietileno convenientemente identificados y, posteriormente se conservan a una temperatura no superior a unos 10 °C y sin acidular, por el motivo ya mencionado.

Por otra parte, la periodicidad de recogida para este tipo de muestras es mensual, coincidiendo con la recogida de las muestras de agua de lluvia.

### **2.2.2.- Determinación de los niveles de concentración de tritio:**

La metodología habitual para medir la actividad específica de tritio es la espectrometría de centelleo líquido, basada en la medida de la radiación  $\beta$  emitida por la muestra líquida, al ponerse en contacto ésta con una sustancia orgánica llamada centelleadora. La interacción de la radiación beta y las moléculas orgánicas, provocan la excitación de dichas moléculas, desexcitándose posteriormente y, dando lugar a la emisión de luz (luminiscencia).

En nuestro estudio se ha utilizado un espectrómetro de centelleo líquido y ultrabajo fondo, modelo Quantulus 1220, de Wallac, que permite realizar medidas de bajo nivel de actividad, gracias a una combinación de blindajes pasivo (capas metálicas de plomo, cobre y cadmio) y activo (formado por una cavidad con líquido centelleador y dos fotomultiplicadores a ambos lados de ella, además de discriminadores regidos por circuitos electrónicos en coincidencia y anticoincidencia). Por otra parte, dispone de un sistema de adición de impulsos eléctricos, que le permite eliminar la dependencia que existe entre la amplitud del voltaje registrado y la posición del vial donde se genera la radiación beta detectada. Además, cuenta con dos multicanales, de 2048 canales cada uno de ellos, dividido en dos mitades. En la mitad de un multicanal se registra el espectro de emisión beta de la muestra y en el resto de mitades se registra información adicional consistente en espectros de fondo debidos a la radiación ambiental o bien al ruido electrónico.

En cuanto a la eficiencia del proceso de detección en la técnica de centelleo líquido, ésta depende del grado de extinción (quenching) que posee la muestra. Esta extinción engloba un conjunto de procesos físicos y químicos, causantes de la reducción del número de fotones procedentes de la sustancia centelleadora, que llegan a incidir sobre los fotomultiplicadores. Esta eficiencia de detección se cuantifica a partir de un parámetro denominado SQP(E) (parámetro espectral de quenching del estándar externo), que da una medida del grado de extinción que sufren las muestras. Por ello, para cuantificar la eficiencia de detección del equipo utilizado, es necesario realizar un calibrado en eficiencias; para lo cual se irradian una serie de muestras de actividad conocida de tritio y extinguidas en grado variable con nitrometano, con una fuente emisora gamma, en este caso  $^{226}\text{Ra}$  (PL-74, LARUEX; PL-75, LARUEX).

Una vez cuantificada la eficiencia de detección, se establecieron las condiciones óptimas de medida, resultando ser las siguientes (García, 2000): empleo del intervalo de canales (1-230) como ventana más adecuada para la determinación

de tritio, establecida mediante el análisis de espectros de muestras de actividad conocidas y muestras consideradas como activas, tiempos de medida de 8 ciclos de 100 minutos cada uno y, el uso de un agua con bajo contenido en tritio (agua muerta o exenta de tritio) para valorar el conteo de fondo del equipo. En estas condiciones se obtiene un AMD inferior a 1,8 Bq/L.

En cuanto a la preparación de la muestra previa a su medida, según las condiciones anteriormente citadas, se pueden distinguir dos tipos de metodología de preparación:

#### **2.2.2.1.- Preparación y medida directa (PL-77, LARUEX):**

Este tipo de procedimiento se aplica a aquellas muestras que son poco salinas, que no presentan coloración y que tienen una buena miscibilidad con el líquido de centelleo. Esta metodología se usa cuando el contenido en tritio, además de su origen cosmogénico, es debido a una fuente de tritio artificial, como es el caso de las muestras estudiadas en el entorno de la CNA (en el presente estudio, para el caso de las muestras de agua de lluvia y vapor de agua).

La metodología seguida para la preparación de las muestras es:

- a) Filtrar una alícuota de la muestra (20 mL) sobre filtros de acetato y nitrato de celulosa de 0,45µm de diámetro de poro.
- b) Añadir 8 mL de la muestra previamente filtrada en un vial de 20 mL de polietileno teflonado.
- c) Añadir 12 mL de la sustancia centelleadora (cóctel de centelleo) en el vial que contiene la muestra.
- d) Agitar hasta homogeneidad de la muestra-cóctel de centelleo.
- e) Introducir el vial con la muestra y cóctel de centelleo en el Quantulus 1220 y, esperar 8 horas antes de iniciar la medida (según las condiciones establecidas mencionadas anteriormente), con el fin de eliminar la interferencia por quimiluminiscencia (PL-75, LARUEX).

#### **2.2.2.2.- Destilación oxidativa previa a la medida (PL-77, LARUEX):**

Este procedimiento se aplica también sobre muestras en las que el contenido en tritio es debido fundamentalmente a fuentes artificiales emisoras de tritio. La principal diferencia con la metodología descrita en el apartado anterior, reside en que este procedimiento es el óptimo para aguas salinas, y/o coloreadas y/o que presentan

mala miscibilidad con el cóctel de centelleo (en el presente estudio, para el caso de las aguas superficiales).

En este procedimiento se realiza una doble destilación:

- a) La primera de ellas se trata de una destilación oxidativa con permanganato potásico, con el fin de eliminar la materia orgánica por oxidación y las posibles sales.
- b) La segunda destilación tiene como objetivo eliminar la coloración rosácea del permanganato remanente de la primera destilación y que produciría extinción o quenching en la muestra.

Una vez se ha efectuado la doble destilación, la muestra se prepara de idéntica forma a la descrita en el apartado 2.2.2.1.

### **2.2.2.3.- Concentración electrolítica (PL-78, LARUEX):**

Tanto la tecnología especial que posee el espectrómetro de centelleo líquido utilizado, como las condiciones de medida seleccionadas en éste, hacen que se disminuya el ruido de fondo y, por consiguiente nos permitan obtener bajos valores de AMD para el tritio. Sin embargo, la medida directa (según los métodos descritos en el apartado 2.2.2.1 y 2.2.2.2) de las muestras estudiadas en este capítulo, no permite detectar actividades netas de tritio en todos los casos. Esta situación ocurrirá, fundamentalmente, en muestras cuyo contenido en tritio se deba principalmente a su origen cosmogénico (en entornos exentos de término fuente).

Por ello, cuando las muestras de agua poseen muy baja actividad de tritio, inferior al AMD o cuando la incertidumbre relativa asociada a dicha actividad es considerable, se requiere aplicar una concentración del tritio por electrolisis, previa a la determinación de la actividad de este radionucleido por espectrometría de centelleo líquido.

No obstante lo anterior, en el caso de las muestras de vapor de agua presente en la atmósfera, colectadas con el colector activo, inicialmente se ha realizado la medida directa del tritio en su forma de vapor de agua o forma oxidada (HTO y T<sub>2</sub>O), mediante el procedimiento descrito en el apartado 2.2.2.1. Posteriormente, se ha realizado la concentración electrolítica de estas muestras acumuladas trimestralmente, siguiendo el procedimiento que a continuación se describe.

En el caso de las muestras de agua de lluvia, se ha realizado la preconcentración de las mismas, en todas aquellas muestras recolectadas mensualmente en las que se disponía de volumen suficiente (al menos 250 mL) para

someterlas a este proceso. Cuando el volumen era muy inferior al citado y, la dilución que se debía hacer para alcanzar el volumen indicado era considerable y, por tanto, era poco probable obtener una actividad inferior al AMD del equipo, se optó por realizar la medida directa descrita en el apartado 2.2.2.1.

En cuanto a la metodología de concentración electrolítica previa a la medida, en su día se puso a punto en el LARUEX la técnica apropiada, consistente en efectuar una electrolisis selectiva del agua a baja temperatura (García, 2000). Este método aprovecha el efecto isotópico existente entre los isótopos del hidrógeno, es decir, las diferencias de masa entre éstos, sobre todo entre el protio y el tritio, para conseguir su separación debido a su diferente movilidad, puesto que las moléculas de agua que contienen el tritio tienen más dificultad para desplazarse hacia a la superficie de los electrodos y ser descompuestos eléctricamente; con lo cual su número aumenta en el residuo acuoso final y se concentra. Además de la baja temperatura a la que se realiza la reacción electrolítica, también favorece dicha reacción la presencia de un electrolito que proporciona un medio básico.

En este sentido, debido a la predecible escasa presencia de tritio, tanto en las precipitaciones recolectadas como en el vapor de agua presente en la atmósfera, será necesario llevar a cabo su concentración electrolítica previa a la determinación del contenido en tritio por espectrometría de centelleo líquido. Mediante esta concentración electrolítica previa de la muestra, en medio básico, se podrán determinar bajos niveles de actividad de tritio, al aumentar considerablemente la sensibilidad en la determinación del contenido en tritio de estas muestras por espectrometría de centelleo líquido, disminuyendo el AMD desde 1,8 Bq/L hasta valores de unos 0,3 Bq/L, para muestras de agua (en el caso de muestras de vapor de agua éste disminuye de unos 25 mBq/m<sup>3</sup> a unos 4 mBq/m<sup>3</sup>).

De forma resumida, el proceso de concentración electrolítica consta de los siguientes pasos:

- a) Destilación previa de la muestra acuosa.
- b) Reacción electrolítica en medio básico.
- c) Neutralización con PbCl<sub>2</sub>.
- d) Destilación final para reducir salinidad.

Inicialmente y antes de comenzar con la reacción electrolítica, se realiza una destilación simple (sin ningún aditivo y a presión atmosférica) de la muestra, con el fin de reducir su contenido salino. Para cada muestra, la electrolisis se lleva a cabo

partiendo de 250 mL de agua, en presencia de 1 g de electrolito  $\text{Na}_2\text{O}_2$  (que aumenta la conductividad) y a baja temperatura (para favorecer la discriminación isotópica de agua tritiada y no tritiada), en una celda de fabricación propia de acero inoxidable que se introduce en un arcón frigorífico. Al final, se obtiene un volumen de unos 25 mL, enriquecidos en tritio. La electrolisis se realiza simultáneamente para tandas de 6 muestras problema, conjuntamente con 3 muestras a las que se ha añadido una actividad perfectamente conocida de tritio y una con agua de fondo, para cuantificar mediante las 4 últimas el factor de concentración que luego se aplicará a las muestras recolectadas (siempre que la reacción haya transcurrido en condiciones de homogeneidad para las 10 celdas, en lo que respecta a los parámetros claves de la reacción, tales como temperatura, intensidad de corriente aplicada y salinidad). El procedimiento de reacción propiamente dicho para el conjunto global de las 10 celdas puede durar unas cuatro semanas, y requiere, a su fin, una neutralización del pH con  $\text{PbCl}_2$  y una destilación final para eliminar las sales originadas en la neutralización.

Tras el anterior proceso, el condensado está listo para mezclarse con el líquido de centelleo, para realizar la espectrometría de centelleo líquido, antes descrita con brevedad en el apartado 2.2.2.1.

Por último, cabe destacar que la totalidad de los ensayos realizados para la determinación del tritio, tanto en el agua de lluvia, como en agua superficial y vapor de agua se ha efectuado mediante procedimientos amparados por la acreditación que el LARUEX posee, nº 628/LE1260, en base a la norma UNE-EN ISO/IEC 17025 (ISO, 2005).

### **2.3.- Análisis de la evolución espacial y temporal de la concentración de tritio en la atmósfera. Correlaciones con otras variables:**

Dado que el objetivo fundamental de este capítulo es el de determinar la influencia que los distintos términos fuentes ejercen sobre los niveles de tritio presentes en las atmósferas de los entornos objeto del presente estudio, para ello se ha subdividido el área de interés en diferentes zonas de estudio, en las que los niveles de tritio a priori esperables son diferentes en cuanto a su origen se refiere. Es decir, una zona que se pueda clasificar de exenta de término fuente artificial de tritio y, por tanto su origen es debido única y exclusivamente a los restos del fallout global y a su origen natural cosmogénico (en nuestro caso, la población de Cáceres). Otra zona en la que, además de su origen natural y al fallout global actual de tritio, exista un término fuente artificial del mismo. Esta última zona es el entorno de la CNA, en la

que tal y como se mostró en las figuras 2.1 y 2.2, existe una inyección de tritio a la atmósfera tanto a través de sus efluentes líquidos, como por los gaseosos.

Por todo lo anterior, en este apartado se realiza un estudio pormenorizado de los resultados experimentales que se han obtenido, en las diferentes zonas (exentas o no de término fuente activo de tritio de origen artificial), para los diferentes puntos de muestreo y tipos de muestras (agua de lluvia y vapor de agua en la atmósfera), haciendo especial hincapié en aquellos que poseen una mayor relevancia a la hora de proporcionar información clave para entender el comportamiento del tritio en la atmósfera, así como su evolución espacial y temporal, utilizando para su interpretación diversas variables meteorológicas, así como los contenidos en tritio en diferentes muestras de aguas superficiales, y cuyas actividades están principalmente gobernadas por los efluentes líquidos de la CNA.

### **2.3.1.- Resultados de los niveles de tritio en la atmósfera de una zona exenta de término fuente artificial:**

Para poder evaluar el impacto que la CNA ejerce sobre la vía aérea debido al tritio inyectado en la atmósfera de su entorno a través de sus efluentes, será necesario realizar un estudio comparativo con los niveles y la variabilidad de éstos en una zona únicamente afectada por un término fuente natural de tritio y por los restos del fallout global. Para ello, se ha seleccionado la localidad de Cáceres.

Dada la predecible ausencia de una contribución antropogénica actual medible en los niveles de tritio presentes en la atmósfera de dicha zona, es de esperar que las concentraciones de este radionucleido, para las muestras mencionadas, estén próximas al AMD del procedimiento, cuando éste se cuantifica mediante la medida directa de estas muestras ambientales, y por lo que sería preciso realizar la concentración electrolítica previa de las mismas, siempre y cuando se disponga de volumen de muestra suficiente para tal fin.

Una primera visión de los resultados experimentales obtenidos para los niveles de tritio determinados, tanto en el agua de lluvia, como en el vapor de agua presente en la atmósfera de Cáceres (ambos por concentración electrolítica previa), para los periodos de muestreo especificados en los apartados 2.2.1.1 y 2.2.1.2, se recoge de forma resumida en la tabla 2.2. Hay que destacar que en el caso de las muestras de tritio presentes en el vapor de agua atmosférico, éstas se han acumulado en muestras trimestrales con el fin de disponer de volumen suficiente para la realización del proceso de concentración electrolítica de las mismas.

<b>Punto de Muestreo</b>	<b>Tipo de muestra</b>	<b>% muestras con <math>A_0 &gt; \text{AMD}</math></b>	<b>Rango (<math>A_{\text{mín}} - A_{\text{máx}}</math>)</b>	<b>Actividad promedio <math>\pm</math> Desviación estándar</b>
Cáceres	Agua de lluvia	94	0,19 – 2,44 (Bq/L)	0,64 $\pm$ 0,44 (Bq/L)
Cáceres	Vapor de agua	100	6,3-16,8 (mBq/m <sup>3</sup> )	11,8 $\pm$ 3,6 (mBq/m <sup>3</sup> )

**Tabla 2.2. Rangos y actividades específicas promedio de tritio determinadas en el agua de lluvia (Bq/L) y vapor de agua atmosférico (mBq/m<sup>3</sup>), recolectadas en Cáceres. Porcentaje de muestras con actividad específica neta ( $A_0$ ) superior AMD del procedimiento.**

En la tabla se observa como en las muestras de agua de lluvia de Cáceres, que a pesar de la concentración electrolítica previa a su medida, existe un 6% de las mismas en las que la actividad específica de tritio es inferior al AMD del procedimiento (unos 0,3 Bq/L). El motivo fundamental es que el volumen de que se disponía en ese 6 % de las muestras, para su concentración electrolítica, era muy inferior al necesario (250 mL) y, por tanto, fue preciso realizar una dilución considerable de la muestra con agua de fondo para alcanzar el volumen indicado.

Sin embargo, en el caso del tritio presente en el vapor de agua atmosférico, se detecta una actividad específica de tritio superior al AMD del procedimiento (unos 4 mBq/m<sup>3</sup> con concentración electrolítica previa) en el 100% de las muestras analizadas.

Asimismo, a través de la tabla 2.2 se puede apreciar que los rangos de actividad de tritio detectados son más dispersos en el agua de lluvia, que en el vapor de agua atmosférico, como demuestra el valor de la desviación estándar asociada a la actividad promedio detectada, llegando a ser hasta en un orden de magnitud mayor, en las muestras de agua de lluvia, para los ocho años que abarca nuestro estudio. En cualquier caso, hay que destacar que estos valores de concentración de tritio son similares a los obtenidos por otros autores para otras localizaciones de características radiológicas similares, es decir, ausentes de términos fuentes

artificiales activos emisores de tritio (Radwan et al., 2001; Sasaki et al., 2000; Stamoulis et al., 2005; Akata et al., 2011).

En las figuras 2.7 y 2.8 se representan las evoluciones temporales de los niveles de actividad de dicho radionucleido detectados tanto en el agua de lluvia, como en el vapor de agua atmosférico recogidos en Cáceres, respectivamente. De su observación se deduce que existe una clara evolución temporal de los niveles de actividad de tritio, presentando unos valores máximos en los meses de primavera y verano y, mínimos en invierno para el tritio en el agua de lluvia y, una serie de valores máximos en aquellas estaciones climatológicas más húmedas del año (otoño-invierno), para los niveles de tritio en el vapor de agua atmosférico.

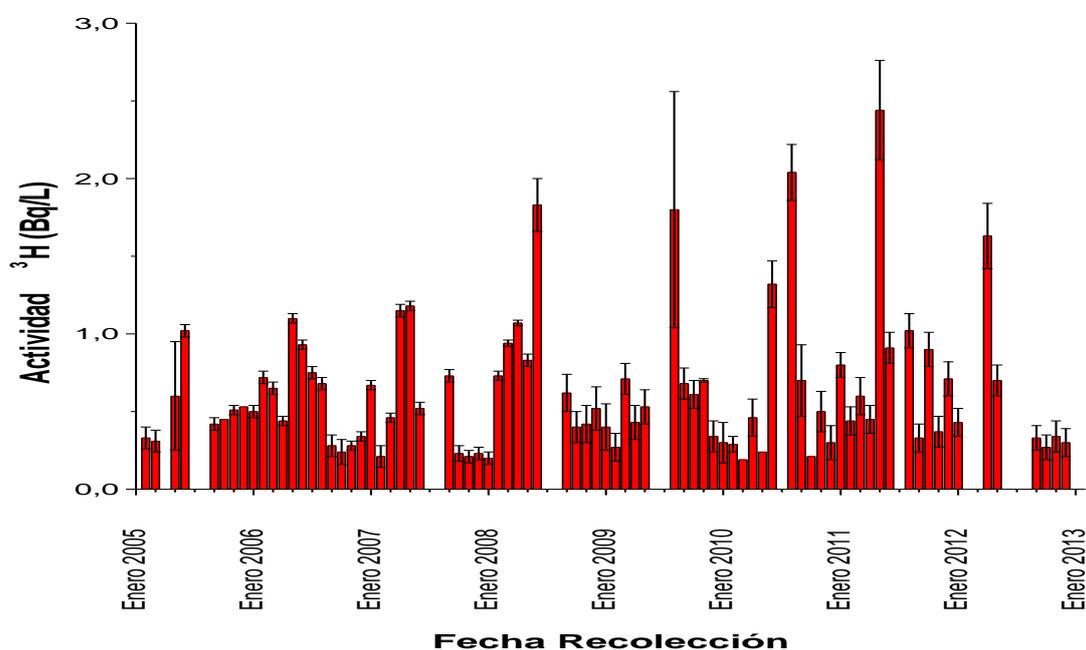
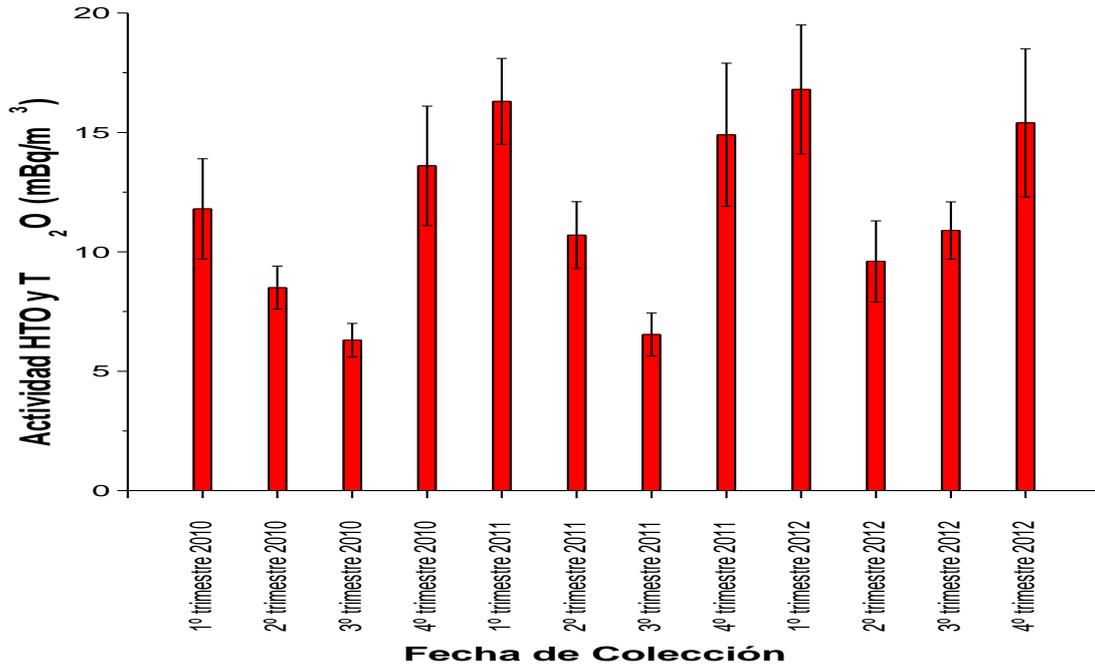


Figura 2.7. Evolución temporal de la actividad específica de tritio (Bq/L),  $^3\text{H}$ , detectada en el agua de lluvia de Cáceres.



**Figura 2.8. Evolución temporal de la actividad específica de tritio (mBq/m<sup>3</sup>), formas químicas HTO + T<sub>2</sub>O, detectada en el vapor de agua atmosférico de Cáceres.**

Para cuantificar la evolución temporal descrita anteriormente, se analizaron los componentes armónicos de esos dos conjuntos de datos, a través de sus respectivos periodogramas, basados en el análisis de Fourier de la serie temporal que constituyen las actividades de <sup>3</sup>H. En las figuras 2.9 y 2.10, se muestran dichos periodogramas tanto en el agua de lluvia, como en el vapor de agua atmosférico de Cáceres, respectivamente. En el caso del tritio en agua de lluvia (figura 2.9) se puede observar claramente que existe una frecuencia dominante,  $f=0,083$ , que corresponde a un período de 12 meses, es decir, el comportamiento cíclico de los datos es de periodicidad básicamente anual. Así mismo, en la figura 2.10 (<sup>3</sup>H en el vapor de agua atmosférico), se puede observar claramente que existe una frecuencia dominante,  $f=0,25$ , que corresponde a un período de 4 trimestres, es decir, el comportamiento cíclico de los datos es de nuevo, de periodicidad básicamente anual.

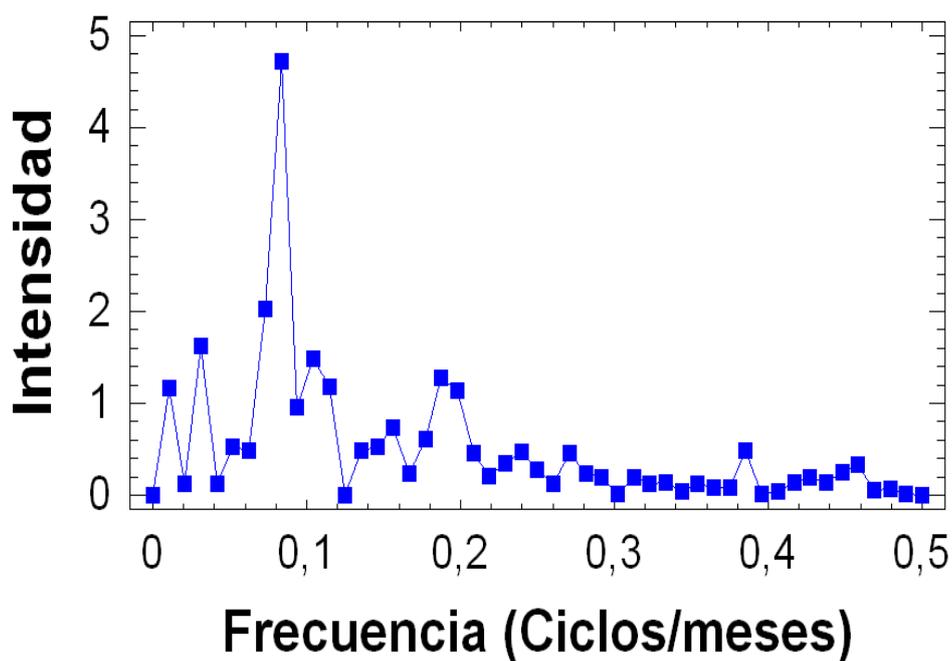


Figura 2.9. Periodograma de los niveles de actividad de  $^3\text{H}$  detectados en el agua de lluvia de Cáceres.

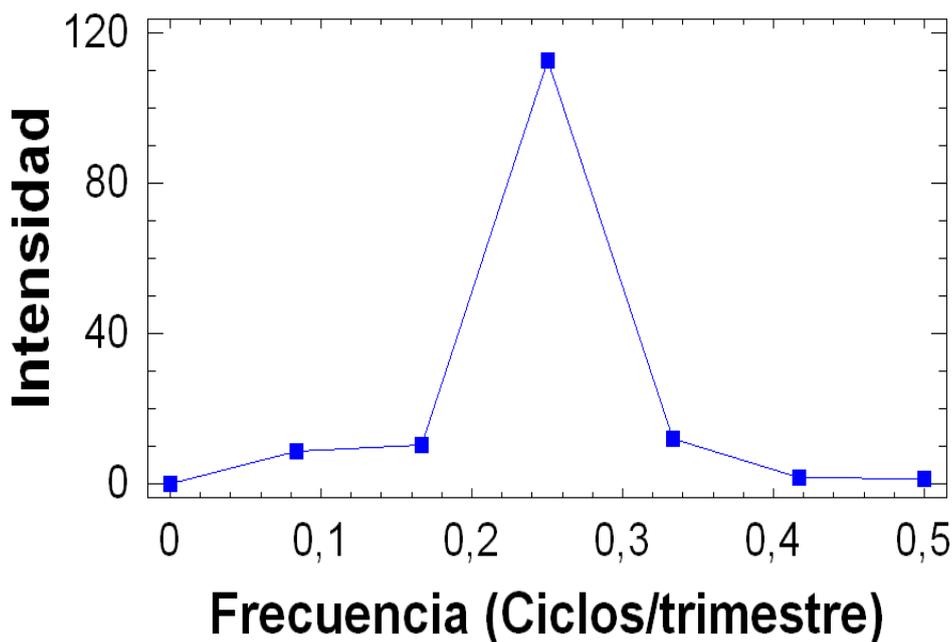


Figura 2.10. Periodograma de los niveles de actividad de  $^3\text{H}$  detectados en el vapor de agua atmosférico de Cáceres.

Este comportamiento coincide con el descrito por otros investigadores para las variaciones observadas en las concentraciones de radionucleidos cosmogénicos, tales como  $^7\text{Be}$ ,  $^{22}\text{Na}$  y  $^3\text{H}$ , los cuales presentan un carácter estacional y su evolución temporal está, al menos, parcialmente correlacionada con la cantidad de precipitación y con los intercambios de aire entre distintas partes de la atmósfera (Baeza et al., 1996; El-Husseini et al., 2001; Grabowska et al., 2003; Stamoulis et al., 2005; Radwan et al., 2001; Sasaki et al., 2000, Akata et al., 2011).

Para corroborar este comportamiento, se ha realizado un estudio comparativo entre la concentración de tritio en el agua de lluvia y las diversas variables meteorológicas que pueden condicionar su dinámica atmosférica, entre ellas las precipitaciones, la humedad relativa y la radiación solar. Así, en las figuras 2.11 y 2.12 se representan las evoluciones temporales de los niveles de tritio detectados en las aguas de lluvia de Cáceres, comparándolos con las precipitaciones mensuales acumuladas y la humedad relativa en esta localidad, respectivamente.

En la figura 2.11 se puede observar, como en los meses en los que han tenido lugar elevadas precipitaciones, los niveles de actividad de tritio son más bajos, que en aquellos en los que las precipitaciones ocurridas han sido más escasas. Este hecho puede justificarse como consecuencia de la progresiva mayor dilución del tritio presente en la lluvia durante periodos de lluvia intensa y continuada (Nankar et al., 2012).

Por su parte, en la figura 2.12 se muestra la evolución temporal de los niveles de tritio en el agua de lluvia de Cáceres, comparándolos con la humedad relativa en la atmósfera de dicha población. Al igual que en el anterior análisis comparativo, en este caso se puede observar que existe una cierta correlación, entre ambas variables; correspondiendo los valores más altos de actividad de tritio, con los meses de más baja humedad relativa, es decir, durante el verano y los valores mínimos, cuando hay una mayor humedad relativa, es decir, en los meses de invierno.

No obstante estas visiones cualitativas, se han cuantificado estas relaciones a través de las correlaciones existentes entre las actividades de tritio detectadas en las muestras de agua de lluvia, con las precipitaciones acumuladas mensualmente (ver figura 2.13.a) y con la humedad relativa en la zona objeto de estudio, Cáceres (ver figura 2.13.c).

Un análisis de los resultados de las correlaciones realizadas permite señalar que la evolución de los niveles de tritio en el agua de lluvia, en la localidad de Cáceres, está débilmente correlacionada, coeficientes de 0,30 y 0,46 ( $p < 0,05$ ), con la

precipitación acumulada mensual y con la humedad relativa, si bien presenta una tendencia negativa con el incremento de ambas variables meteorológicas, como cualitativamente se deducía de la visualización de las figuras 2.11 y 2.12.

Por su parte, la correlación existente entre los niveles de tritio en el agua de lluvia de Cáceres y la irradiación solar en Serrejón (ver figura 2.13.b), a pesar de que ambas poblaciones distan entre sí unos 60 km en línea recta, es más significativa que las anteriores, 0,52 ( $p < 0,05$ ) y positiva, de forma que permite confirmar la importancia que la actuación solar tiene sobre la atmósfera, como principal término fuente de la producción de tritio en el entorno de Cáceres capital.

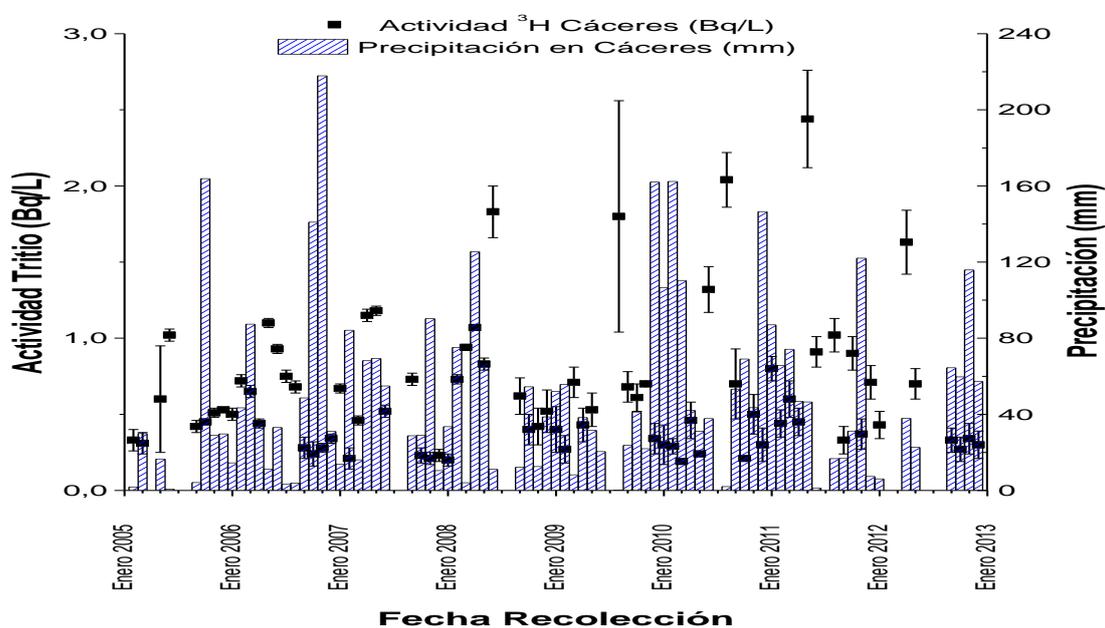


Figura 2.11. Análisis comparativo de la evolución temporal de la actividad específica de tritio (Bq/L) detectada en el agua de lluvia y la precipitación acumulada mensual (mm), en Cáceres.

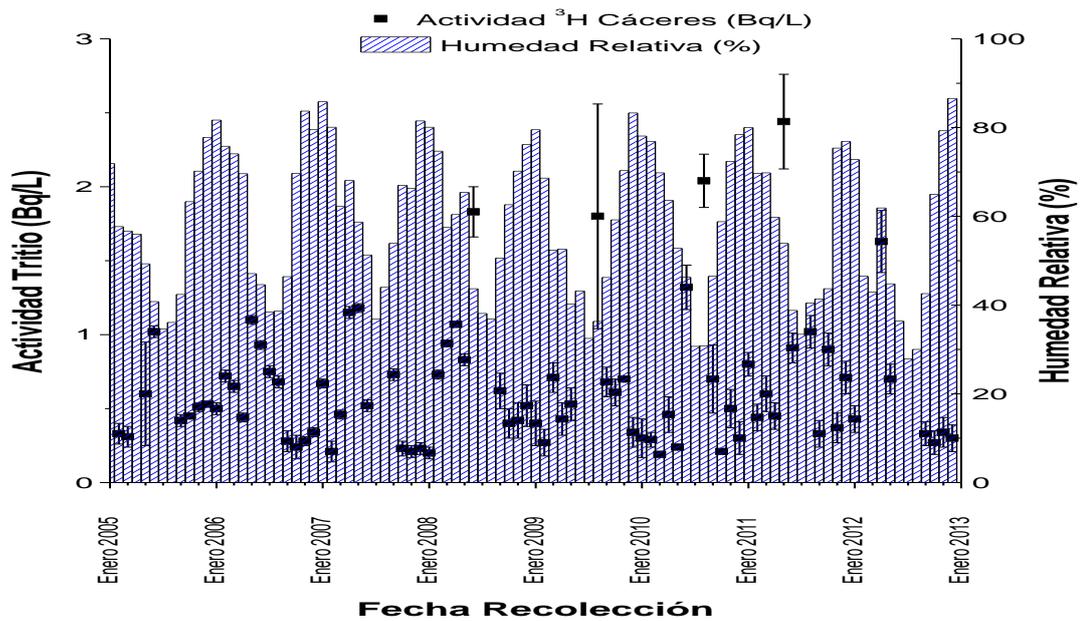


Figura 2.12. Análisis comparativo de la evolución temporal de la actividad específica de tritio (Bq/L) detectada en el agua de lluvia y la humedad relativa (%), en Cáceres.

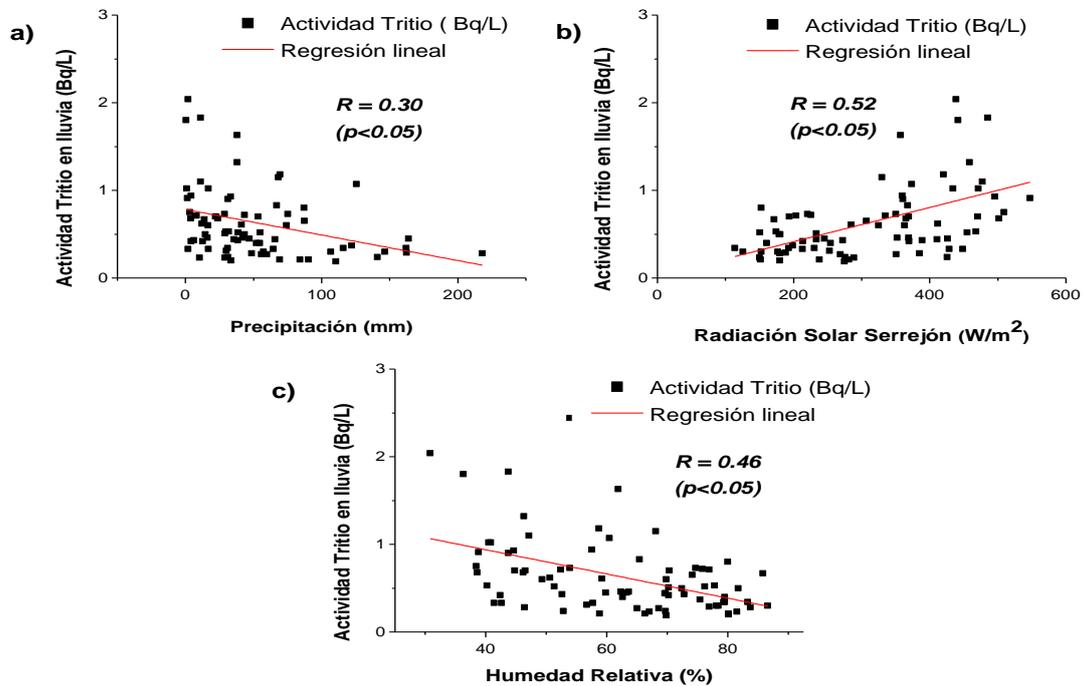


Figura 2.13. Correlaciones de la actividad específica de tritio en muestras de lluvia (Bq/L) de Cáceres con: a) Precipitación mensual de Cáceres (mm), b) Radiación solar de Serrejón ( $W/m^2$ ) y c) Humedad relativa de Cáceres (%).

Como consecuencia de lo anterior, se ha analizado la evolución temporal de los niveles de actividad de tritio en el agua de lluvia de Cáceres conjuntamente con las tres citadas variables meteorológicas, a través de una regresión lineal múltiple. Así en la ecuación 2.1 se presenta la ecuación resultante de dicho ajuste.

$${}^3H_{lluvia} = (0,26 \pm 1,70) \cdot 10^{-3} \cdot H + (0,94 \pm 0,24) \cdot 10^{-3} \cdot R - (0,98 \pm 1,07) \cdot 10^{-3} \cdot P ; r = 0,88 \quad (2.1)$$

donde:

**${}^3H_{lluvia}$** : actividad de tritio en el agua de lluvia de Cáceres (Bq/L)

**$H$** : Humedad relativa de Cáceres (%)

**$R$** : Radiación solar de Serrejón (W/m<sup>2</sup>) y,

**$P$** : Precipitación mensual acumulada en Cáceres (mm)

De nuevo se observa, como la variable meteorológica que condiciona en mayor medida a la concentración de <sup>3</sup>H en el agua de lluvia de Cáceres es la radiación solar, ya que de los coeficientes de los tres términos, éste es el único estadísticamente significativo con un nivel de confianza superior al 99%, siendo de un 54 y 64 % los valores para el caso de la humedad relativa y la precipitación, respectivamente. Por su parte, la precipitación presenta un efecto negativo sobre la producción de <sup>3</sup>H, como consecuencia de la dilución que realiza sobre el tritio presente en la atmósfera.

Por último, en la figura 2.14.a y 2.14.b, se muestran respectivamente los niveles de actividad de <sup>3</sup>H en agua de lluvia medidos y, los que se predicen haciendo uso de la ecuación 2.1, así como la evolución de los residuos con el tiempo

$\left( \frac{A_{experimental} - A_{modelo}}{A_{experimental}} \right) \cdot 100$ . Se puede observar que existe un buen grado de

concordancia entre los niveles de actividad experimental y predicha; a excepción de varias fechas puntuales correspondientes a los meses de junio de 2008, agosto de 2009, agosto de 2010; mayo de 2011 y abril de 2012, en las que hubo una mayor producción de tritio debido a la mayor irradiación solar y un menor efecto de dilución y limpieza de la atmósfera, debido a la escasa precipitación ocurrida durante estos meses.

En cuanto a la figura 2.14.b de la evolución de los residuos con el tiempo, se observa que tienen una distribución aleatoria y próxima a cero (con un residuo medio

de  $-0,001$  Bq/L y una desviación estándar de  $\pm 0,374$  Bq/L), con una dispersión prácticamente constante a excepción de los valores puntuales mencionados con anterioridad, lo que pone de manifiesto la idoneidad del modelo desarrollado.

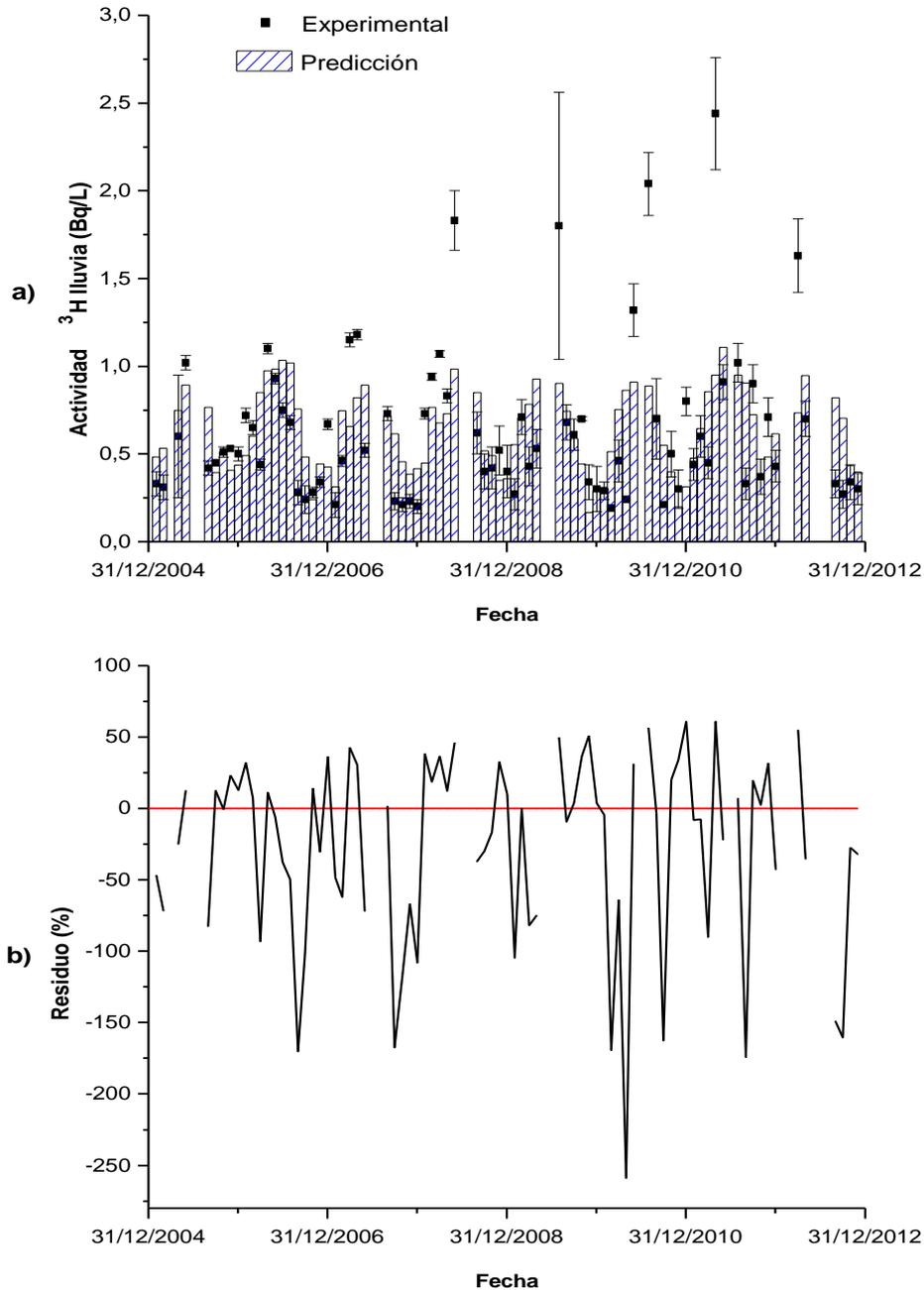


Figura 2.14. a) Comparación entre los niveles de actividad de tritio, en el agua de lluvia de Cáceres, experimental y predicho por el modelo; b) evolución temporal de los residuos.

### **2.3.2.- Resultados de los niveles de tritio en la atmósfera de una zona con aporte artificial en el entorno de la Central Nuclear de Almaraz:**

En este apartado se pretende evaluar, el impacto que la CNA ejerce sobre la vía aérea, debido al tritio inyectado en la atmósfera de su entorno, a través de sus efluentes líquidos y gaseosos, comparando los niveles de tritio detectados en la atmósfera del entorno de la CNA con los de la localidad de Cáceres, esta última considerada como “zona exenta o zona con niveles de fondo radiactivo de tritio en la atmósfera”.

Dada la previsible contribución mayoritaria antropogénica en los niveles de tritio presentes en la atmósfera de este entorno, las concentraciones del tritio, para las muestras mencionadas, serán en la mayoría de las muestras superiores al AMD del procedimiento, con lo que bastaría con realizar la medida directa de las mismas. No obstante, se realizará la concentración electrolítica previa de las muestras, siempre y cuando se disponga de volumen suficiente, con el objetivo de disminuir, tanto el AMD del procedimiento, como la incertidumbre relativa asociada a las actividades detectadas.

Así, en la tabla 2.3 se presenta un resumen de los resultados experimentales obtenidos para las muestras de agua de lluvia y de vapor de agua atmosféricos analizadas, tanto por medida directa, como a partir de la concentración electrolítica previa a su medida. Al igual que para las muestras de vapor de agua atmosférico de Cáceres, para las muestras colectadas en Serrejón y Almaraz, una vez realizada la medida directa de las mismas, éstas se han acumulado en muestras trimestrales para su posterior concentración electrolítica. Los periodos de muestreo para los diferentes tipos de muestras son los que se detallaron en los apartados 2.2.1.1, 2.2.1.2 y 2.2.1.3.

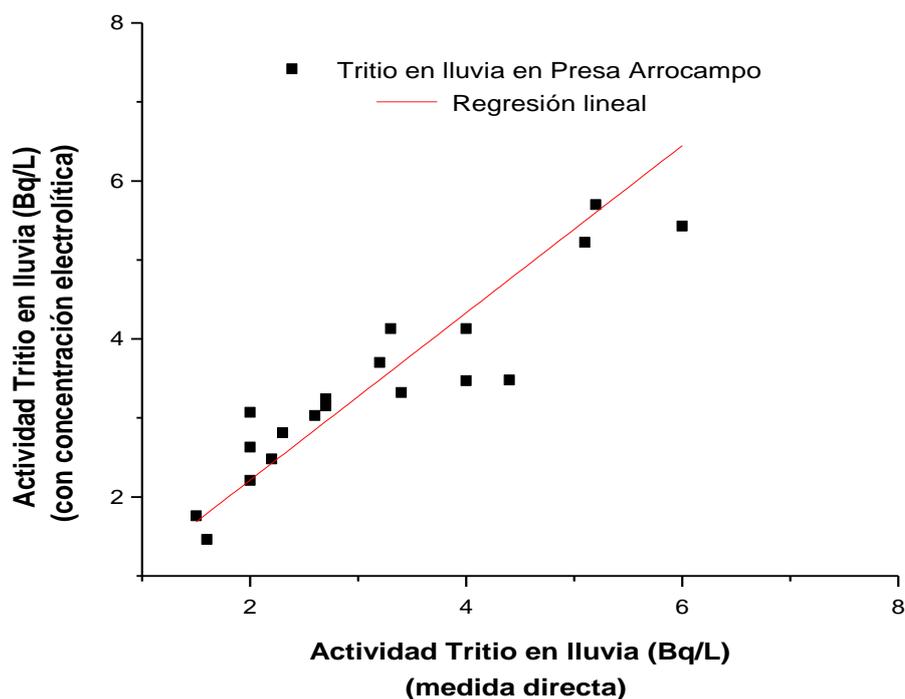
Como se puede observar en la tabla 2.3, mientras que las actividades medias medidas por ambos procedimientos son relativamente similares en todos los tipos de muestras analizadas, las actividades máximas son diferentes, siendo sistemáticamente mayores los valores sin concentración electrolítica a los de con concentración electrolítica, hecho particularmente notable en el vapor de agua atmosférico de la estación de Serrejón. El motivo radica en la distinta frecuencia de muestreo, siendo ésta para la medida directa, quincenal, mientras que en la medida con concentración electrolítica previa, se acumulan las muestras correspondientes a un mismo trimestre de recogida, con el fin de obtener el volumen necesario para realizar dicha concentración electrolítica.

	Punto de Muestreo	Tipo de muestra	$A_0 > \text{LID}$ (%)	Rango ( $A_{\text{mín}} - A_{\text{máx}}$ )	Actividad media $\pm$ Desviación estándar
<b>Sin concentración electrolítica (frecuencia quincenal)</b>	Presa Arrocampo	Agua de lluvia	73	1,5-16,4 (Bq/L)	3,3 $\pm$ 1,3 (Bq/L)
	Almaraz	Vapor de agua	79	29-126 (mBq/m <sup>3</sup> )	61 $\pm$ 27 (mBq/m <sup>3</sup> )
	Serrejón	Vapor de agua	32	35-101 (mBq/m <sup>3</sup> )	55 $\pm$ 20 (mBq/m <sup>3</sup> )
<b>Con concentración electrolítica (frecuencia trimestral)</b>	Presa Arrocampo	Agua de lluvia	100	0,85-10,87 (Bq/L)	4,4 $\pm$ 2,3 (Bq/L)
	Almaraz	Vapor de agua	100	26-86 (mBq/m <sup>3</sup> )	60 $\pm$ 21 (mBq/m <sup>3</sup> )
	Serrejón	Vapor de agua	100	24-49 (mBq/m <sup>3</sup> )	34 $\pm$ 10 (mBq/m <sup>3</sup> )

**Tabla 2.3. Rangos y actividades específicas medias para el tritio en agua de lluvia (en Bq/L) y en vapor de agua atmosférico (en mBq/m<sup>3</sup>), mediante medida directa y con concentración electrolítica previa, colectadas en el entorno de la CNA. Porcentaje de muestras con actividad neta ( $A_0$ ) superior al AMD del procedimiento.**

Con el fin de poner de manifiesto la compatibilidad entre los resultados obtenidos, tanto a partir de la medida directa de las muestras de agua de lluvia de Presa Arrocampo, como previa concentración electrolítica de las mismas, en la figura 2.15 se muestra el ajuste lineal entre los resultados obtenidos mediante las dos técnicas. En esta figura se observa que existe una buena correlación entre ambos grupos de resultados; siendo la pendiente muy próxima a la unidad y una ordenada en el origen próxima a cero.

$${}^3H_{\text{concentración electrolítica}} = (0,06 \pm 0,07) \cdot {}^3H_{\text{medida directa}} + (0,10 \pm 0,22); r = 0,93$$



**Figura 2.15. Ajuste lineal entre la actividad del tritio en lluvia en Presa Arrocampo con y sin concentración electrolítica previa a la medida de la muestra.**

Como puede observarse en la tabla anterior, en el área del entorno de la CNA, el porcentaje de muestras analizadas (tanto para muestras de agua de lluvia, como para las de vapor de agua atmosférico) en las que se ha detectado una actividad específica neta de tritio superior al AMD del procedimiento es relativamente elevado. La excepción la constituye las muestras de vapor de agua atmosférico de Serrejón, para las que el porcentaje de muestras con actividades detectables es significativamente menor. Este hecho puede justificarse por su localización opuesta a la dirección de los vientos dominantes desde la CNA. El hecho de que existan unos porcentajes de muestras relativamente elevados con actividades específicas netas de tritio y superiores a los detectados en Cáceres, como zona exenta de término fuente artificial, sugiere la presencia de una contribución adicional a la cosmogénica, es decir una contribución antropogénica de dicho radionucleido en la zona del entorno de la CNA.

Por otra parte, se puede apreciar en la tabla como los rangos de actividad de tritio en ambos tipos de muestras llegan a variar incluso hasta en un orden de

magnitud como ya ocurriese en el caso de las muestras de agua de lluvia de la zona de Cáceres. En este sentido, se han comparado, a través del coeficiente expresado en tanto por ciento, los valores medios de los niveles de tritio detectados en el entorno de la central nuclear de Almaraz y Cáceres, tanto para el agua de lluvia, como para el vapor de tritio atmosférico, medidas todas ellas con concentración electrolítica; obteniéndose que este cociente es:

- a) de un 700 % para el tritio presente en la lluvia de Presa Arrocampo y Cáceres,
- b) de un 500 % para el tritio presente en el vapor de agua atmosférico en Almaraz y Cáceres y,
- c) de un 300 % para el tritio presente en el vapor de agua atmosférico en Serrejón y Cáceres.

Estos resultados ponen de manifiesto la clara influencia que la CNA ejerce sobre los niveles de tritio en la atmósfera de su entorno, al compararlo con los niveles de tritio presentes en la atmósfera de otro entorno exento de cualquier término fuente artificial de tritio, como es la atmósfera de Cáceres.

En este sentido, hay que destacar que los niveles de actividad de tritio obtenidos en los tipos de muestras analizadas en el entorno de la CNA, son similares a los encontrados por otros autores en otras localizaciones de similares características (Radwan et al., 2001; Sasaki et al., 2000; Stamoulis et al., 2005; Akata et al., 2011, Miljević et al., 2000; Okai et al., 1999; Paunescu et al., 1999).

Con el objetivo de cuantificar la influencia que dicha instalación nucleoelectrónica ejerce sobre el tritio presente en la atmósfera de su entorno, se han realizado diversos tipos de análisis que se detallan a continuación.

En las figuras 2.16 y 2.17, se presentan las evoluciones temporales de los niveles de actividad de tritio detectados en las muestras de agua de lluvia en Presa Arrocampo, previa concentración electrolítica de las mismas, y en el vapor de agua atmosférico, mediante la medida directa de las muestras, recolectadas en Almaraz y Serrejón, respectivamente.

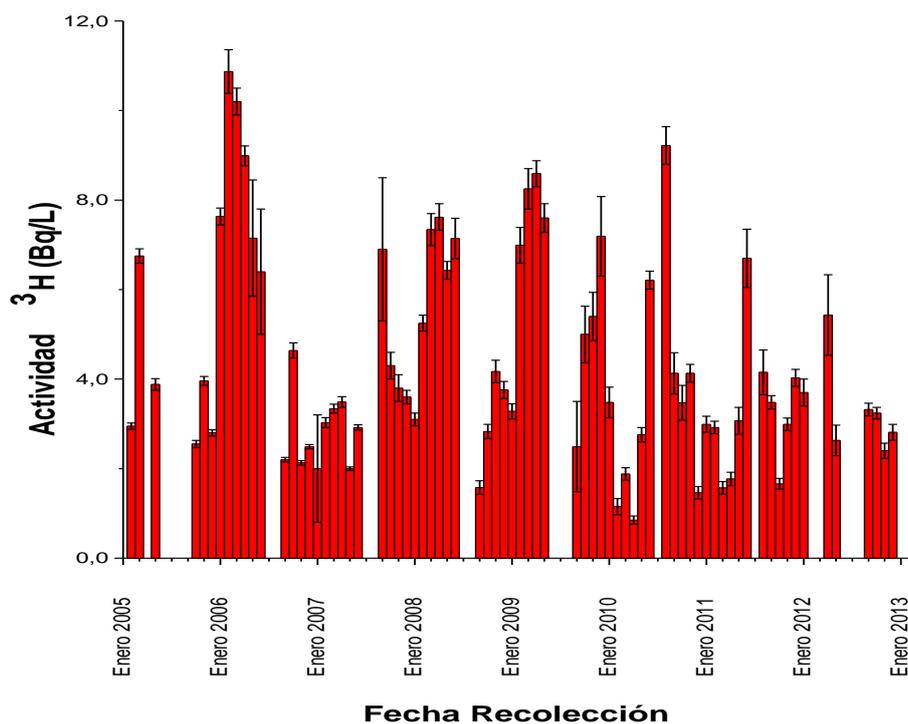


Figura 2.16. Evolución temporal de la actividad específica de tritio (Bq/L),  $^3\text{H}$ , detectada en el agua de lluvia de Presa Arrocampo.

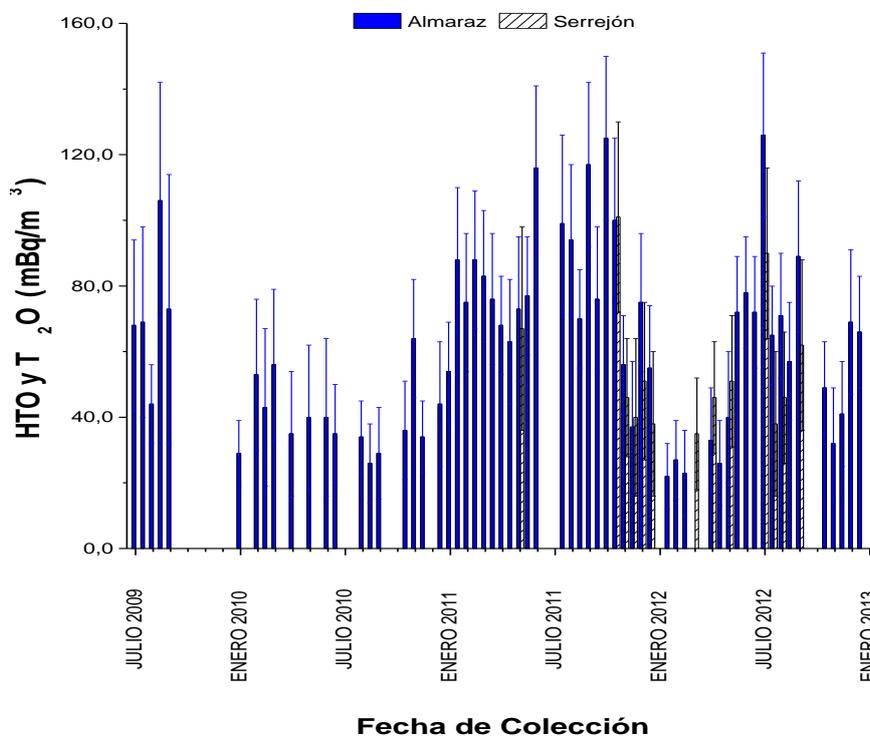


Figura 2.17. Evolución temporal de la actividad específica de tritio ( $\text{mBq}/\text{m}^3$ ),  $^3\text{H}$ , detectada en el vapor de agua de Almaraz y Serrejón.

Hay que destacar que en la figura 2.17, se representan sólo aquellas muestras en las que se ha detectado una concentración específica neta de tritio superior al AMD.

Como se puede observar en las figuras 2.16 y 2.17, al contrario de lo que ocurría en las muestras de agua de lluvia y de vapor de agua presente en la atmósfera de Cáceres, no se aprecia una clara temporalidad en las mismas. De hecho, cuando se trata de cuantificar la evolución temporal de los niveles de tritio en el agua de lluvia de Presa Arrocampo y en el vapor de agua de la atmósfera de Almaraz, mediante el análisis de los componentes armónicos de esos conjuntos de datos, a través de sus respectivos periodogramas (figuras 2.18 y 2.19, respectivamente), se obtienen en ambos casos una frecuencia dominante de  $f = 0,083$ , que:

- a) en el caso de las concentraciones de tritio en la lluvia recolectada en Presa Arrocampo, se corresponde con un período de 12 meses (periodicidad anual que marca el origen natural del tritio), pero existen además otras frecuencias dominantes de amplitudes casi equivalentes, con periodicidades diferentes a la anual y de, a priori, difícil interpretación
- b) para el caso de las muestras de vapor de agua atmosférico en Almaraz, se corresponde a un período de 12 trimestres (3 años), periodicidad no válida, ya que se corresponde con todo el periodo de muestreo estudiado.

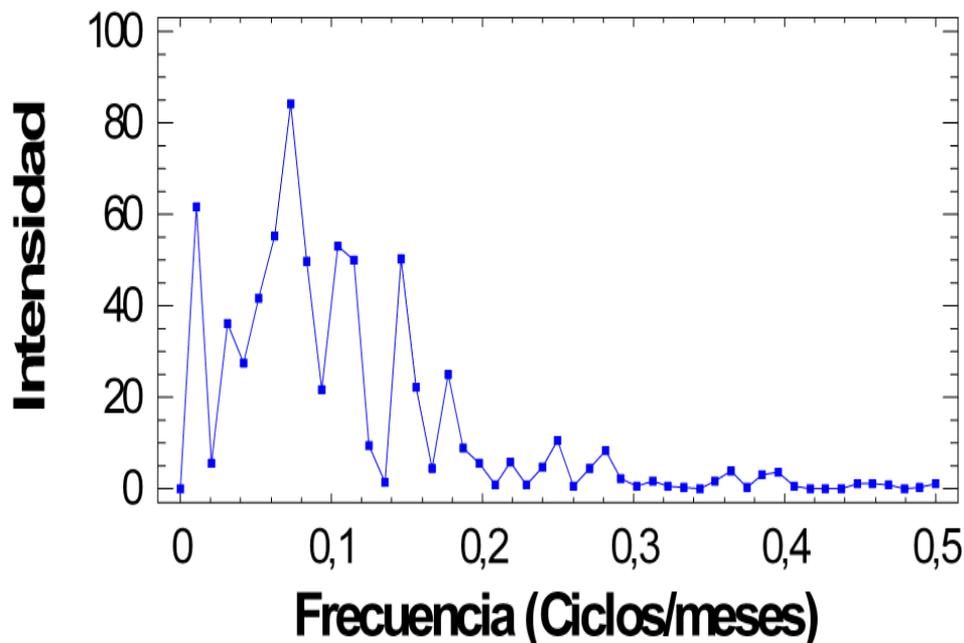
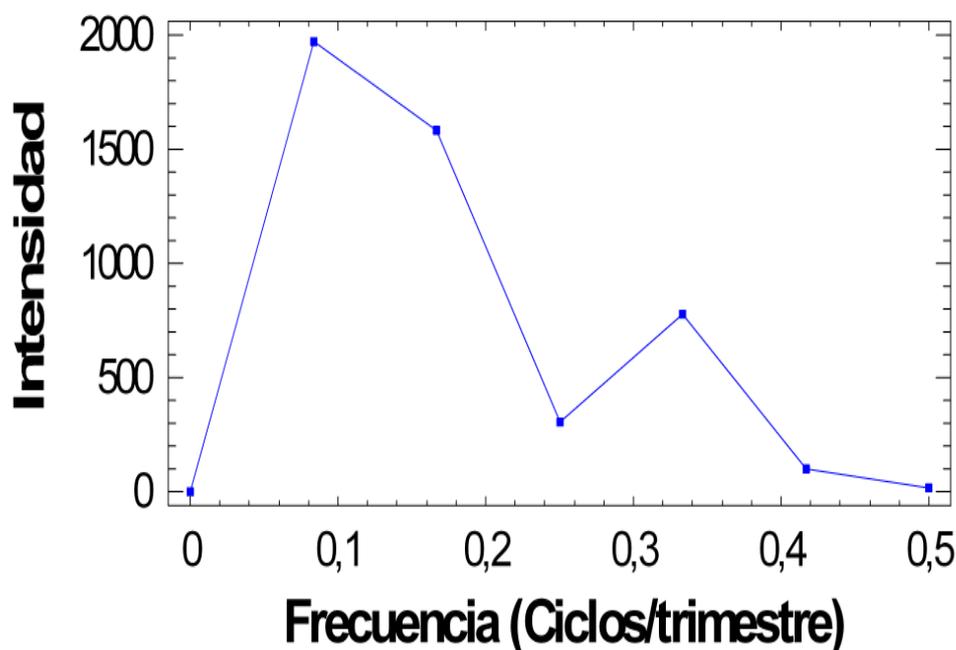


Figura 2.18. Periodograma de los niveles de actividad de  $^3\text{H}$  detectados en el agua de lluvia de Presa Arrocampo.



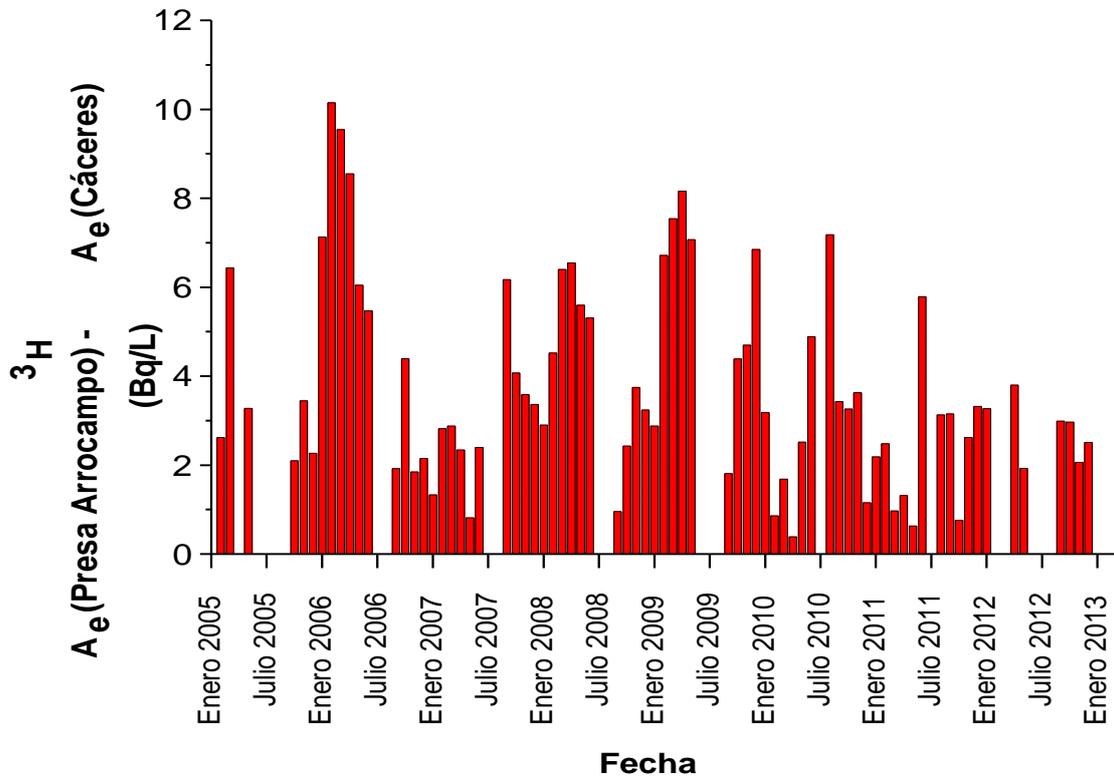
**Figura 2.19. Periodograma de los niveles de actividad de  $^3\text{H}$  detectados en el vapor de agua atmosférico de Almaraz.**

Dada la naturaleza fundamentalmente cosmogénica del tritio en los entornos exentos de término fuente artificial, y que en tales condiciones este radionucleido presenta una evolución temporal con un marcado carácter estacional, se puede concluir que en el caso que ahora nos ocupa, vapor de agua y agua de lluvia en el entorno de la CNA, al no presentar al menos de forma exclusiva dicha temporalidad, debe existir algún tipo de aporte artificial para este radionucleido a la atmósfera sin una clara periodicidad temporal.

Para cuantificar el aporte de tritio que la CNA ejerce sobre la atmósfera de su entorno, se representan en las figuras 2.20 y 2.21, la evolución temporal de las diferencias entre las actividades de tritio detectadas en la atmósfera de la CNA y en Cáceres, tanto para el agua de lluvia, como en el vapor de agua atmosférico, previa concentración electrolítica de las mismas.

En la figura 2.20, se observa que la diferencia existente entre la actividad de tritio presente en el agua de lluvia recolectada en la Presa Arrocampo y en Cáceres, es generalmente máxima en los meses de invierno, es decir, cuando la precipitación es máxima y, mínima en los meses de verano. Así pues, el rango de niveles de actividad de tritio que la CNA aporta a la atmósfera de su entorno es de (0,39-10,15) Bq/L, con un aporte promedio de 3,74 Bq/L (el 85% de la actividad media total de la tabla 2.3).

La justificación del enriquecimiento con tritio en la lluvia registrada en el entorno de Almaraz durante los meses de invierno, puede deberse a la mayor concentración del mismo existente en el agua del embalse de Arrocampo durante dicho periodo y, por lo tanto en la atmósfera de su entorno. Esto es consecuencia de la mayor facilidad de refrigeración de estas aguas, dada las bajas temperaturas del ambiente durante estas fechas y, por consiguiente, a la menor necesidad de intercambio de agua desde el río Tajo a dicho embalse y, como consecuencia, es fácil registrar concentraciones de tritio en las aguas de dicho embalse, del orden de 60-700 Bq/L (Baeza et al., 2005).



**Figura 2.20. Evolución temporal de las diferencias de actividades de tritio, en Bq/L, presentes en el agua de lluvia de Presa Arrocampo y Cáceres.**

Por su parte, en la figura 2.21 se representa la evolución temporal de la diferencia existente entre la actividad de tritio presente en el vapor de agua atmosférico recolectado en las poblaciones de Almaraz y Cáceres. En este caso, no se observa una clara evolución temporal en el aporte de tritio que la CNA ejerce sobre el vapor de agua de la atmósfera de dicho entorno; si bien a partir del año 2011, este aporte es máximo en los meses de verano y mínimo en los meses de invierno. En cualquier caso, el rango de niveles de actividad de tritio en el vapor de agua

atmosférico que la central nuclear de Almaraz aporta a la atmósfera de su entorno en la dirección de vientos más favorables se encuentra en el rango de (17,7-79,1) mBq/m<sup>3</sup>, con un aporte promedio de 48,2 mBq/m<sup>3</sup> (el 80% de la actividad media total de la tabla 2.3).

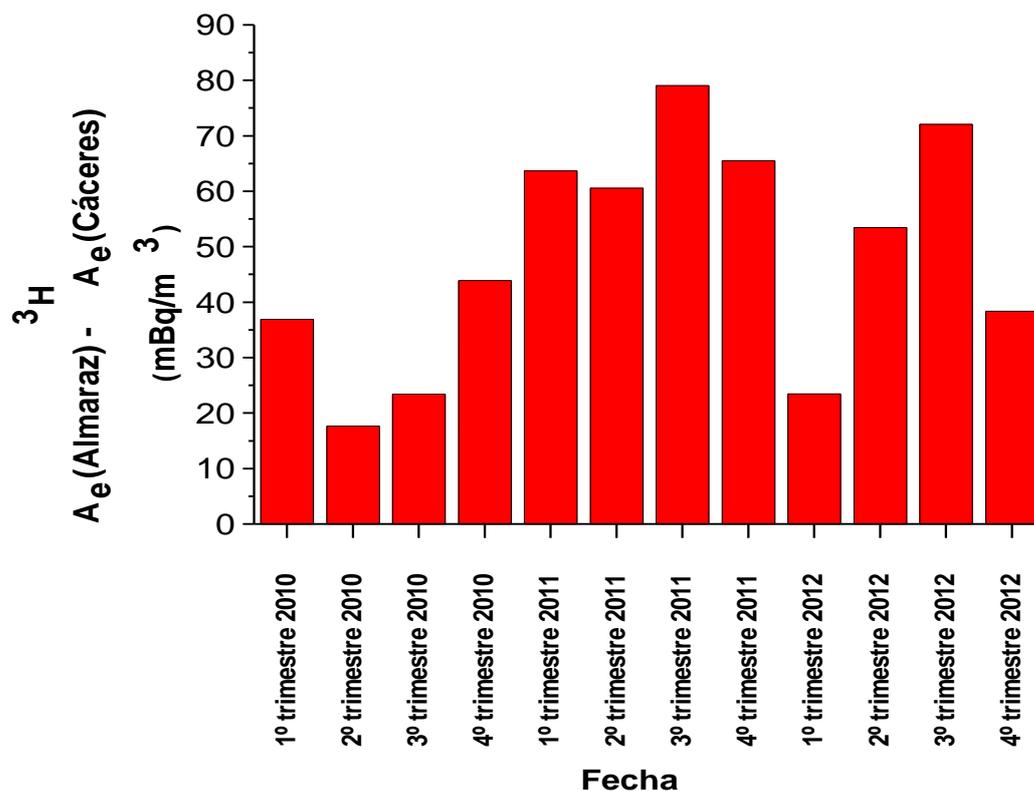


Figura 2.21. Evolución temporal de las diferencias de actividades de tritio, en mBq/m<sup>3</sup>, presentes en el vapor de agua atmosférico de Almaraz y Cáceres.

Por otro lado, se ha realizado un estudio de las correlaciones que existen entre los niveles de actividad de tritio, tanto en el agua de lluvia, como en el vapor de agua de la atmósfera del entorno de la CNA, con diversas variables meteorológicas de la zona, registradas concretamente en las poblaciones de Serrejón y Saucedilla, que pueden condicionar su dinámica, como son: la radiación solar (fuente de producción natural del tritio), la humedad relativa o las precipitaciones. En este estudio, se observa que en ninguno de los casos existe una correlación estadísticamente significativa. En la tabla 2.4 se presentan los coeficientes de correlación (R), con una probabilidad  $p < 0,05$ , obtenidos para los niveles de actividad de tritio en la lluvia y vapor de agua, con las variables meteorológicas mencionadas anteriormente.

Tipo Muestra	Variables Meteorológicas de Saucedilla (Cáceres)			Variables Meteorológicas de Serrejón (Cáceres)		
	Radiación Solar	Humedad Relativa	Precipitación	Radiación Solar	Humedad Relativa	Precipitación
Lluvia	R= 0,30	R= 0,22	R= 0,17	R= 0,22	R= 0,21	R= 0,06
Vapor de agua	R= 0,24	R= 0,29	R= 0,13	R= 0,38	R= 0,36	R= 0,03

**Tabla 2.4. Coeficientes de correlación (R), con  $p < 0,05$ , de los niveles de actividad de tritio en agua de lluvia y vapor de agua atmosférico con: la radiación solar, la humedad relativa y la precipitación medidas en las poblaciones de Saucedilla y Serrejón (Cáceres).**

Por tanto, se puede concluir que estas variables meteorológicas no justifican, por si solas, los niveles de actividad de tritio detectados. Por ello, y como se puso de manifiesto con anterioridad, puede afirmarse que es la componente de origen no natural, de las emisiones líquidas y gaseosas de la CNA, la responsable fundamental de la concentración de tritio en la atmósfera del citado entorno.

En este sentido, se ha realizado un estudio mediante un ajuste de regresión lineal múltiple entre las actividades de tritio detectadas en ambos tipos de muestras con:

- a) aquellos factores que se pueden considerar como los principales responsables del aporte de tritio a la atmósfera, es decir, los principales puntos de evacuación de los efluentes líquidos de la CNA. En este caso, se han tenido en cuenta las actividades de tritio en las aguas superficiales del Embalse Arrocampo (sistema de refrigeración de la CNA) y de Presa Arrocampo (punto de evacuación al río Tajo del sistema de refrigeración del agua de Embalse Arrocampo), así como sus respectivas temperaturas.
- b) las diferentes variables meteorológicas que pueden gobernar, al menos parcialmente, la presencia y dinámica del tritio en la atmósfera; bien sea a través del aporte del mismo a la atmósfera debido a su origen cosmogénico (radiación solar) o su eliminación a través del efecto de limpieza que dicha variable pueda ejercer en la atmósfera (por precipitación), e incluso con

variables con las que pudiera tener una cierta correlación, como es el caso de la humedad relativa, dado que la principal forma química del tritio en ésta es el vapor de agua (HTO) y la velocidad media de los vientos favorables en la dirección CNA-Almaraz. Se han considerado los valores de estas variables meteorológicas tanto para la localidad de Serrejón como para la de Saucedilla, que es donde poseemos estaciones meteorológicas, ambas situadas en el entorno de la CNA y, próximas a los diferentes puntos de toma de muestras.

A continuación, se abordan los resultados obtenidos del ajuste de regresión lineal múltiple para cada uno de los tipos de muestras analizadas.

- 1) *Tritio en agua de lluvia recogida en Presa Arrocampo*: el resultado de las regresiones múltiples entre la actividad de tritio y sus actividades en las precipitadas aguas superficiales, así como con las temperaturas de las mismas y, las variables meteorológicas de las dos localidades utilizadas, se observa que el modelo que mejor se ajusta a los resultados es el que se detalla en la ecuación 2.3:

$$A_e({}^3\text{H})_{\text{lluvia}} = k_1 \cdot A_e({}^3\text{H})_{\text{Embalse Arrocampo}} + k_2 \cdot R_{\text{Saucedilla}} ; \quad (2.3)$$

Donde:

- $A_e({}^3\text{H})_{\text{lluvia}}$ : actividad específica mensual del tritio, en Bq/L, en el agua de lluvia de Presa Arrocampo.
- $A_e({}^3\text{H})_{\text{EmbalseArrocampo}}$ : actividad específica mensual del tritio, en Bq/L, en el agua superficial de Embalse Arrocampo.
- $R_{\text{Saucedilla}}$ : es la radiación solar media mensual, en W/m<sup>2</sup>, en Saucedilla.
- $k_1$  y  $k_2$ : coeficientes del ajuste.

Del estudio de todas las regresiones múltiples estudiadas se concluye que:

- a) de forma sistemática y para todas las regresiones múltiples realizadas, se obtienen coeficientes de regresión ligeramente superiores cuando se correlacionan las actividades del tritio en lluvia con las del agua del Embalse de Arrocampo ( $R = 0,940$   $p < 0,05$ ), en comparación con las de Presa Arrocampo ( $R = 0,925$   $p < 0,05$ ), lo cual es a priori esperable dada la mayor superficie de evaporación desde el primer embalse, que desde la zona del embalse de Torrejón identificada como Presa Arrocampo, y

- b) para todas las regresiones múltiples entre las actividades del tritio en lluvia con las del agua del Embalse de Arrocampo, estos coeficientes de regresión son similares, independientemente que se usen las variables meteorológicas registradas en la estación de Serrejón o en la de Saucedilla. Este mismo comportamiento también se repite en el caso de las regresiones múltiples del tritio en la lluvia, con las del tritio en el agua superficial de Presa Arrocampo.

En la tabla 2.5, se presentan los resultados obtenidos según el modelo de regresión múltiple de la ecuación 2.3, para los valores de los coeficientes ( $k_1$  y  $k_2$ ) de las variables independientes estudiadas, que gobiernan los niveles de actividades de tritio detectados en el agua de lluvia de Presa Arrocampo.

Coeficientes $\pm$ error	Valor t	Nivel significación	<b>R = 0,940</b>
$k_1: (1,51 \pm 0,17) \cdot 10^{-2}$ (adimensional)	8,84	$4,08 \cdot 10^{-13}$	
$k_2: (9,53 \pm 1,35) \cdot 10^{-3}$ (Bq·m <sup>2</sup> )/(L·W)	7,08	$7,79 \cdot 10^{-10}$	

**Tabla 2.5. Datos del ajuste de regresión lineal múltiple de los niveles de actividad de tritio en el agua de lluvia de Presa Arrocampo.**

Cabe destacar que con este modelo se consigue explicar el 94,0 % de la varianza de los datos. Por otra parte, los coeficientes de los dos términos son estadísticamente significativos con un nivel de confianza, en ambos casos, superiores al 99,9 %. Además, se puede observar como la variable que mayor peso tiene en el modelo de regresión múltiple, es la actividad del tritio en el agua superficial del embalse Arrocampo (contribución de origen antropogénico), seguido del de radiación solar.

A la vista de los resultados, se puede concluir que el origen de los niveles de actividad de tritio en lluvia recolectados en el punto de presa de Arrocampo son directamente proporcionales a la actividad del tritio en el agua superficial del embalse de Arrocampo, coincidiendo los máximos niveles de actividad de tritio en la lluvia (figura 2.16) con los máximos de actividad en el agua del embalse Arrocampo, que tienen lugar durante los meses de otoño-invierno. Durante estos meses, en los

que la temperatura del aire es relativamente baja, estos máximos en los niveles de actividad de tritio en el agua de dicho embalse se producen por la continua recirculación del agua de refrigeración por el circuito existente para tal fin y, por la menor renovación de la misma con el agua del río Tajo, con el consiguiente aumento en la concentración del tritio en la misma. Su evaporación a la atmósfera se ve favorecida en los días de altos niveles de radiación solar, como así mismo demuestra la correlación obtenida con el precipitado parámetro.

Por último, en la figura 2.22.a se muestran los niveles de actividad obtenidos experimentalmente de  $^3\text{H}$  en el agua de lluvia de Presa Arrocampo y, los que se predicen haciendo uso de la ecuación 2.3 y los datos del ajuste presentados en la tabla 2.5. Asimismo, en la figura 2.22.b se representa la evolución temporal de los residuos ( $^3\text{H}_{\text{experimental}} - ^3\text{H}_{\text{predicción}}$ ). A partir de la gráfica 2.22.a, se puede observar que existe un elevado grado de concordancia entre los niveles de actividad experimentales y los predichos. En cuanto a la figura 2.22.b, la evolución de los residuos con el tiempo tiene una distribución aleatoria y próxima a cero (con un residuo medio de 0,02 Bq/L y una desviación estándar de  $\pm 1,70$  Bq/L), con una dispersión prácticamente constante a lo largo del tiempo. Todo ello pone de manifiesto la idoneidad del modelo construido para predecir el comportamiento que tendría la evolución temporal del tritio en el agua de lluvia del entorno de la CNA.

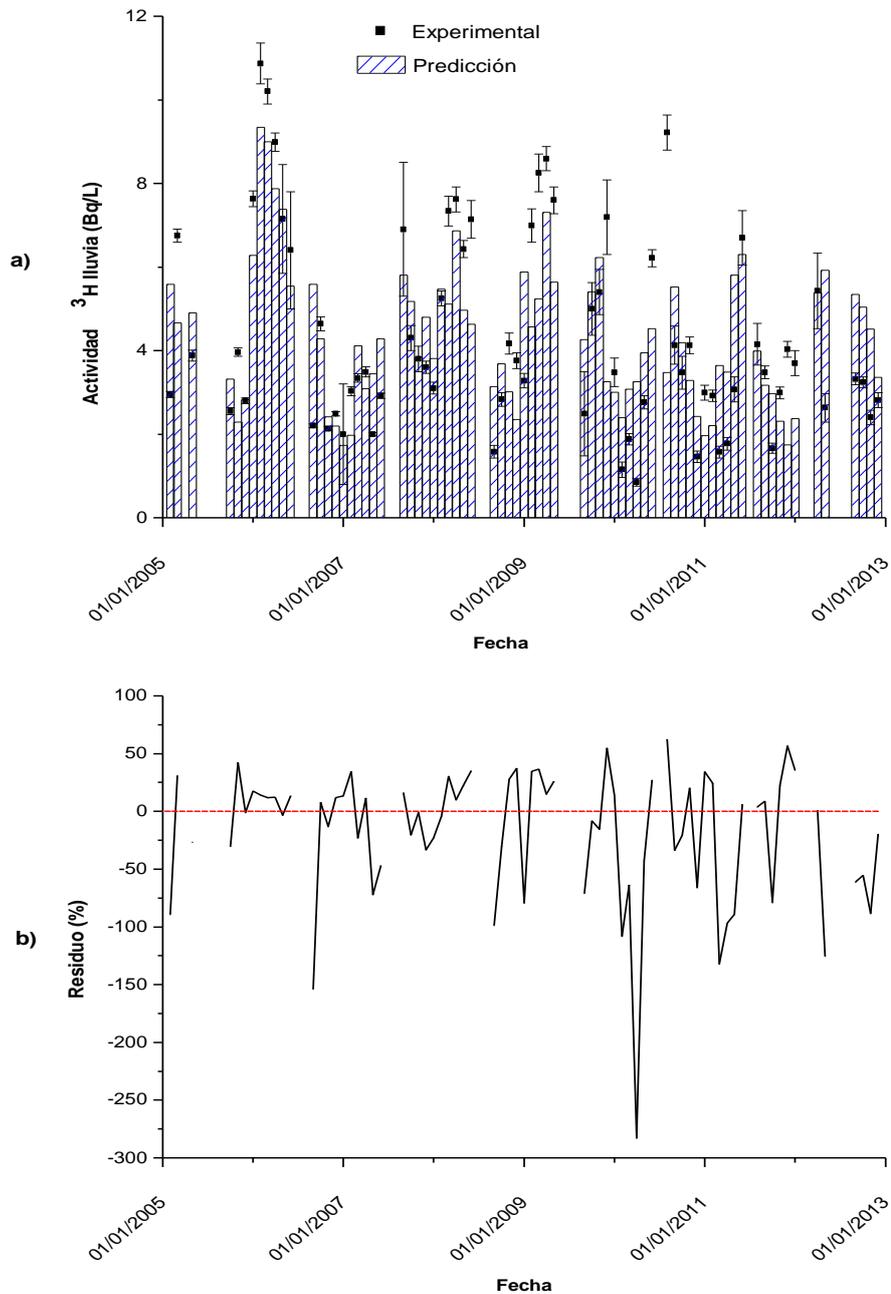


Figura 2.22. a) Comparación entre los niveles de actividad de tritio, en el agua de lluvia de presa Arrocampo, obtenidos experimentalmente y predichos por el modelo; b) evolución temporal de los residuos.

- 2) *Tritio en el vapor de agua atmosférico de Almaraz*: se ha llevado a cabo el estudio de las regresiones múltiples existentes entre las actividades de tritio en el vapor de agua, con las actividades en las aguas superficiales del embalse y de la presa de Arrocampo, así como con las temperaturas de éstas, las variables meteorológicas de Serrejón y Saucedilla y, la velocidad media de los vientos favorables en la dirección CNA-Almaraz, observándose que el modelo que mejor se ajusta a los resultados, es el que se detalla en la ecuación 2.4:

$$A_e \left( {}^3H \right)_{\text{vapor agua}} = k_1 \cdot (T^a)_{\text{Embalse}} + k_2 \cdot R_{\text{Serrejón}} + k_3 \cdot H_{\text{Serrejón}} + k_4 \cdot \bar{V} ; \quad (2.4)$$

Donde:

- $A_e ({}^3H)_{\text{vapor agua}}$ : actividad específica, como promedio ponderado mensual del tritio, en el vapor de agua de la atmósfera de Almaraz (mBq/m<sup>3</sup>)
- $(T^a)_{\text{Embalse}}$ : temperatura del agua superficial del embalse de Arrocampo en el momento de la recogida de dicha muestra (°C)
- $R_{\text{Serrejón}}$ : es la radiación solar media mensual en Serrejón (W/m<sup>2</sup>)
- $H_{\text{Serrejón}}$ : es la humedad relativa de Serrejón (%)
- $\bar{V}$ : velocidad media de los vientos en la dirección CNA-Almaraz (m/s)
- $k_1, k_2, k_3$  y  $k_4$ : coeficientes del ajuste

Del estudio de todas las regresiones múltiples ensayadas se concluye que:

- a) la regresión múltiple que mejor explica las evoluciones de los niveles de tritio en el vapor de agua presente en la atmósfera de Almaraz, es la que se correlacionan estos niveles con las temperaturas en el agua superficial del Embalse Arrocampo, la radiación solar y humedad relativa de Serrejón y la velocidad media de los vientos en la dirección CNA-Almaraz ( $R = 0,939$   $p < 0,05$ ); siendo este coeficiente de correlación muy similar al que se obtiene con la temperatura del agua de presa Arrocampo ( $R = 0,935$   $p < 0,05$ ), y
- b) sin embargo, los coeficientes obtenidos cuando se realiza la regresión múltiple con la temperatura del agua superficial del Embalse Arrocampo, son estadísticamente significativos para un nivel de confianza superior al 90,4 % en el peor de los casos (temperatura del agua del Embalse Arrocampo), que cuando se utiliza como variable la temperatura de presa Arrocampo, que es del 62,1 %.

En la tabla 2.6, se presentan los resultados obtenidos según el modelo de regresión múltiple de la ecuación 2.4, para los valores de los coeficientes ( $k_1$ ,  $k_2$ ,  $k_3$  y  $k_4$ ) de las variables independientes estudiadas, que gobiernan los niveles de actividades de tritio detectados en el vapor de agua presente en la atmósfera de Almaraz.

Coeficientes $\pm$ error	Valor t	Nivel significación	<b>R = 0,939</b>
$k_1$ : $-1,68 \pm 0,98$ (mBq/(m <sup>3</sup> ·°C))	-1,71	$9,6 \cdot 10^{-2}$	
$k_2$ : $0,20 \pm 0,06$ (mBq·m <sup>2</sup> )/(m <sup>3</sup> ·W)	3,36	$2,0 \cdot 10^{-3}$	
$k_3$ : $0,92 \pm 0,20$ (mBq/(m <sup>3</sup> ·%))	4,68	$4,7 \cdot 10^{-5}$	
$k_4$ : $-13 \pm 4$ (mBq·s)/(m <sup>4</sup> )	-2,99	$5,3 \cdot 10^{-3}$	

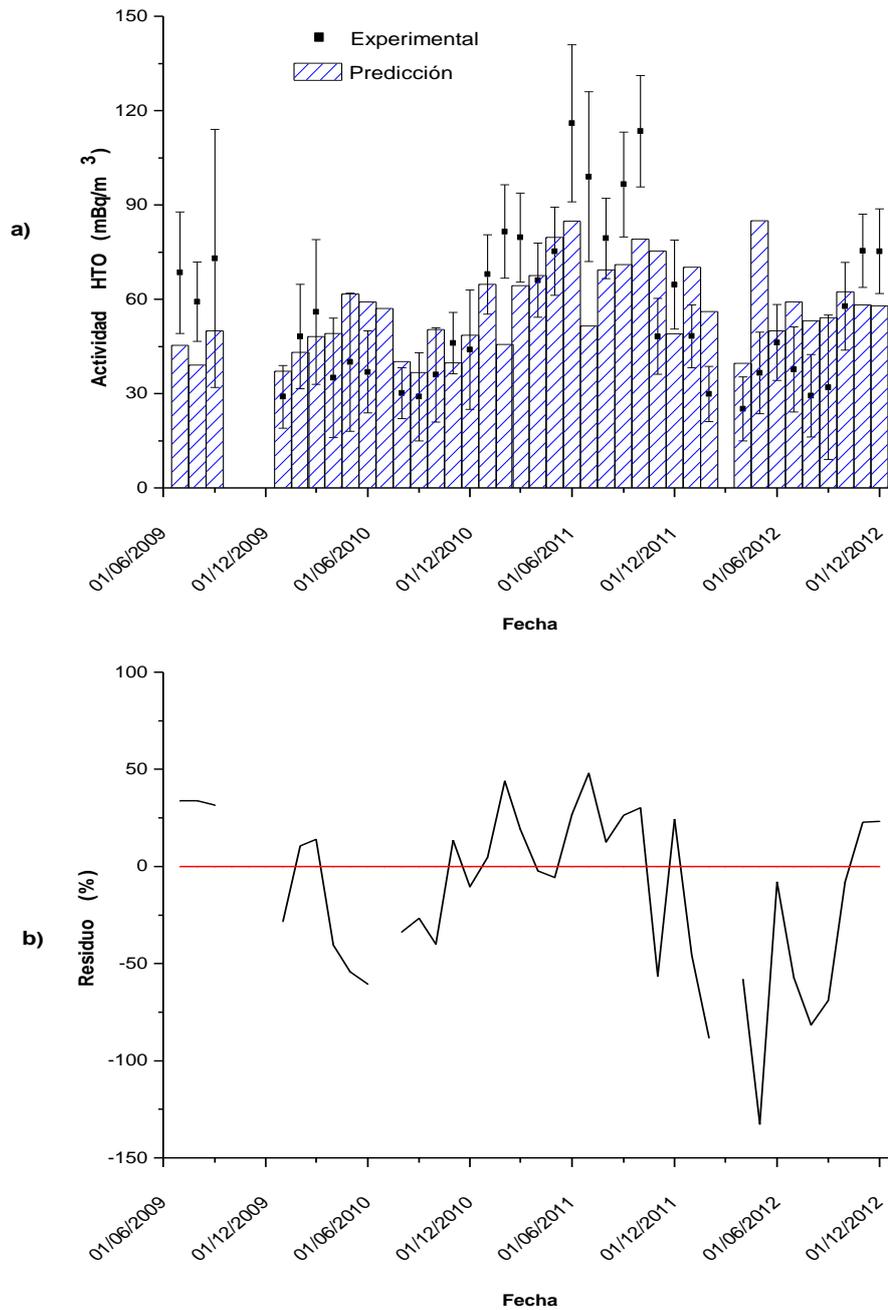
**Tabla 2.6. Datos del ajuste de regresión lineal múltiple de los niveles de actividad de tritio en el vapor de agua atmosférico de Almaraz.**

Con este modelo se consigue explicar el 93,9 % de la varianza de los datos. En este caso, de entre las variables independientes estudiadas, la velocidad media de los vientos favorables en la dirección CNA-Almaraz es la que ejerce un mayor peso en los resultados obtenidos haciendo uso de la regresión lineal múltiple estudiada, seguido de la temperatura del agua del embalse Arrocampo, la humedad relativa y la radiación solar de Serrejón.

El hecho de que el peso de la velocidad media de los vientos dominantes en la dirección mencionada anteriormente sea negativo, puede interpretarse en el sentido de que cuanto mayor sea la velocidad de éstos, menor será el tiempo de residencia del vapor de agua en la zona sometida a estudio y, por tanto, menor probabilidad de poder recolectar dicho vapor de agua.

Por otra parte, el peso negativo que la temperatura del embalse Arrocampo ejerce sobre los niveles de tritio en el vapor de agua de la atmósfera de su entorno, se puede significar que cuanto mayor sea su temperatura, aunque la evaporación de ésta a la atmósfera será mayor y, por lo tanto, habrá una mayor actividad de tritio procedente del embalse Arrocampo, sin embargo, es en estos periodos en los que la humedad relativa del aire es menor. Además en dichos periodos de relativamente elevada temperatura ambiental es cuando existe una menor concentración de tritio en el agua del embalse Arrocampo, dada la mayor renovación de la misma al mezclarla con las aguas del río Tajo, con el fin de forzar la disminución de la temperatura en el agua del sistema de refrigeración de la CNA.

Por último, en la figura 2.23.a se muestran los niveles de actividad obtenidos experimentalmente de  $^3\text{H}$  en el vapor de agua presente en la atmósfera de Almaraz y, los que se predicen haciendo uso de la ecuación 2.4 y, de los datos del ajuste presentados en la tabla 2.6. En la figura 2.23.b se representa la evolución de los residuos ( $\text{HTO}_{\text{experimental}} - \text{HTO}_{\text{predicción}}$ ) con el tiempo. A partir de la gráfica 2.23.a, se puede observar que existe un considerable grado de concordancia entre los niveles de actividad experimentales y los predichos; a excepción de una serie de muestras, en las cuales el modelo no consigue justificar los valores medidos. Este mismo hecho se pone de manifiesto en la figura 2.23.b, en la que aunque la evolución de los residuos tiene una distribución prácticamente aleatoria (con un residuo medio de  $0,4 \text{ mBq/m}^3$  y una desviación estándar de  $\pm 21,6 \text{ mBq/m}^3$ ), existen una serie de valores en los que estos residuos se alejan bastante del cero.



**Figura 2.23. a) Comparación entre los niveles de actividad de tritio, en el vapor de agua de la atmósfera de Almaraz, obtenidos experimentalmente y predichos por el modelo; b) evolución temporal de los residuos.**

Cabe destacar que las muestras en donde existe una gran discrepancia entre los valores experimentales y los predichos por el modelo, coinciden en todos los casos con paradas en los reactores de la CNA, bien sean paradas programadas (recargas de

combustible) o paradas no programadas (sucesos notificables). Así, en la tabla 2.7 se muestra un resumen de los periodos de muestreo en los que existe esta mayor discrepancia entre los valores de tritio experimentales y los predichos por el modelo de regresión, junto con las fechas de las paradas efectuadas en los reactores de la CNA.

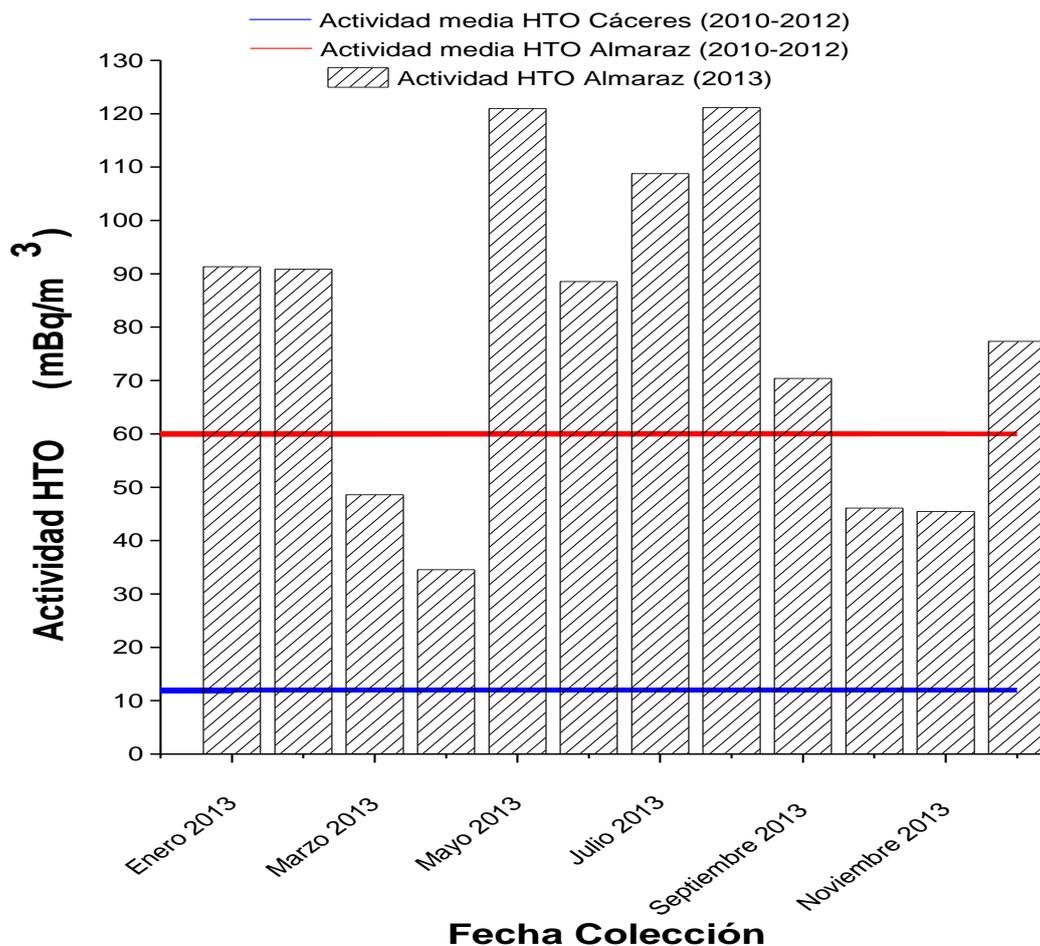
$^3\text{H}_{\text{vapor agua}}$			Paradas reactores CNA		
Periodo	$^3\text{H}_{\text{experimental}}$ (mBq/m <sup>3</sup> )	$^3\text{H}_{\text{modelo}}$ (mBq/m <sup>3</sup> )	Fecha Parada	Tipo Parada	Descripción del suceso
Febrero 2011	82	46	21-11-10 a 25-01-11	Programada	Recarga combustible Unidad II
Junio 2011	116	85	10-06-11 a 21-07-2011	Programada	Recarga combustible Unidad I
Julio 2011	99	51	10-06-11 a 21-07-2011	Programada	Recarga combustible Unidad I
Octubre 2011	113	79	25-10-11 a 31-10-11	No Programada	Intervención motor bomba principal nº 2
Mayo 2012	37	85	07-05-12 a 20-06-12	Programada	Recarga combustible Unidad II
Mayo 2012	37	85	21-05-12 a 19-06-12	Programada	Recarga combustible Unidad I

**Tabla 2.7. Datos del periodo de muestreo del vapor de agua en la atmósfera de Almaraz y, paradas de los reactores de la CNA (CNAT, 2016).**

Así, si se comparan los modelos generados utilizando o no estas actividades, se obtiene que los coeficientes del ajuste para la ecuación 2.4, son en ambos casos del mismo orden de magnitud: ( $k_1$ :  $-1,39 \pm 0,85$  mBq/(m<sup>3</sup>·°C),  $k_2$ :  $0,17 \pm 0,06$  (mBq·m<sup>2</sup>)/(m<sup>3</sup>·W),  $k_3$ :  $0,92 \pm 0,18$  (mBq/(m<sup>3</sup>·%) y  $k_4$ :  $-13 \pm 4$  (mBq·s)/(m<sup>4</sup>)). Sin embargo, cuando no se usan estos valores, el modelo logra explicar un mayor porcentaje de la varianza de los datos (95,7%). Por otro lado, se obtiene un residuo medio de  $-2,7$  mBq/m<sup>3</sup> y una desviación estándar de  $\pm 16,6$  mBq/m<sup>3</sup>. Con todo ello, se puede concluir que el modelo generado mediante la ecuación 2.4 y las actividades detalladas en la tabla 2.7, reproduce de manera muy satisfactoria la evolución temporal de prácticamente la totalidad de los datos; y permite detectar posibles alteraciones en los niveles de tritio, provocadas por incidencias o anomalías en la atmósfera de dicho entorno, o por alteraciones en el funcionamiento rutinario de la CNA.

Por último, dada la puesta en funcionamiento de las torres de refrigeración de la CNA (verano 2012 y verano 2013), se ha realizado una primera evaluación (para el año 2013) del impacto radiactivo que sobre su atmósfera ha supuesto el nuevo modo de operar del sistema de refrigeración.

En la figura 2.24, se representan los valores promedios de actividad de tritio en el vapor de agua presente en las atmósferas de Cáceres y Almaraz durante el periodo comprendido entre 2010 y 2012, así como los niveles de tritio detectados en el vapor de agua de Almaraz, una vez puestas en funcionamiento las citadas torres de refrigeración de la CNA, durante el año 2013. En esta figura se puede apreciar, como ya se pusiera de manifiesto anteriormente, la mayor concentración de tritio en aquellas zonas próximas a un emplazamiento nuclear (Almaraz) que en aquellas exentas de contribución antropogénica (Cáceres). Por otra parte, el valor que se obtiene al restar la actividad promedio de tritio en el vapor de agua de Almaraz durante el periodo 2010-2012 ( $60 \pm 21$  mBq/m<sup>3</sup>) con el correspondiente a esta misma muestra durante el año 2013 ( $79 \pm 30$  mBq/m<sup>3</sup>), es de  $19 \pm 5$  mBq/m<sup>3</sup>. Por tanto, se puede concluir que el tritio presente en el vapor de agua de la atmósfera de Almaraz, ha sufrido un ligero aumento, una vez puestas en funcionamiento las torres de refrigeración de la Central Nuclear de Almaraz, debido al tritio incorporado a la atmósfera vía aérea. Resultado éste que no obstante debe corroborarse para un mayor periodo temporal.



**Figura 2.24. Actividades medias, en mBq/m<sup>3</sup>, de tritio en vapor de agua en Cáceres (azul) y Almaraz (rojo) para los años 2010-2012. Actividades de tritio, en mBq/m<sup>3</sup>, en vapor de agua de Almaraz para el año 2013.**

#### **2.4.- Conclusiones:**

Una vez expuestos los resultados del estudio del tritio en la atmósfera en una zona exenta de término fuente artificial y en otra con aporte antropogénico o artificial de tritio, procedemos a realizar una síntesis de los resultados y conclusiones obtenidos.

1. Existe una buena reproducibilidad entre los niveles de actividades de tritio obtenidos mediante el procedimiento de medida directa y por concentración electrolítica de la muestra, previa a su medida.
2. Las concentraciones de tritio presentes en el agua de lluvia y en el vapor de agua atmosférico, para una zona ausente de términos fuentes artificiales emisores de

tritio (Cáceres), presentan variaciones estacionales con periodicidad básicamente anual (típicas de radionucleidos cosmogénicos); siendo estos valores máximos en los meses de primavera y verano para el agua de lluvia y, en otoño-invierno (estaciones climatológicas más húmedas) para las muestras de vapor de agua atmosférico.

3. Cuando se ajustan los niveles de actividad de tritio presente en el agua de lluvia de Cáceres, mediante un modelo de regresión lineal múltiple con las variables meteorológicas como la radiación solar, humedad relativa y precipitación, se consigue justificar el 88 % de la varianza de los mismos. La radiación solar es la que mayor peso ejerce en los resultados obtenidos y, por tanto, el principal término fuente en la producción de tritio en el entorno de Cáceres.
4. Las concentraciones de tritio presentes en el agua de lluvia y el vapor de agua atmosférico en el entorno de la central nuclear de Almaraz, no presentan evoluciones temporales con carácter estacional, típicas de radionucleidos de origen principalmente cosmogénico. Por otra parte, la ratio porcentual entre la actividad promedio de tritio, detectada en el entorno de la central nuclear de Almaraz y Cáceres es de: un 700 % para el tritio detectado en el agua de lluvia y, un 500 % para el tritio en el vapor de agua atmosférico. Asimismo, las actividades promedio de tritio que la CNA aporta a la atmósfera de su entorno es de 3,74 Bq/L y 48,2 mBq/m<sup>3</sup> en el agua de lluvia y vapor de agua atmosférico, respectivamente. Todo lo cual, pone de manifiesto el claro aporte artificial que dicha instalación nucleoelectrónica ejerce sobre los niveles de actividad de este radionucleido a la atmósfera.
5. El ajuste realizado, mediante una regresión lineal múltiple, entre los niveles de actividad del tritio en el agua de lluvia de presa Arrocampo y, las actividades de tritio del agua superficial del embalse Arrocampo y la radiación solar, que reproduce el 94% de la varianza de los datos, indica que la actividad de tritio en el agua de lluvia es fundamentalmente directamente proporcional a la actividad de tritio en el agua superficial de dicho embalse. Así, el enriquecimiento en tritio en el agua de lluvia es de  $1,55 \cdot 10^{-2}$  Bq/L por cada Bq/L en el agua del citado embalse y de  $9,83 \cdot 10^{-3}$  Bq/L por cada W/m<sup>2</sup> de energía solar.
6. El ajuste realizado, mediante regresión lineal múltiple, entre los niveles de actividad del tritio en el vapor de agua presente en la atmósfera de Almaraz y, la temperatura del embalse de Arrocampo, la radiación solar, la humedad relativa y la velocidad media de los vientos favorables en la dirección CNA-Almaraz; indica

que la actividad de tritio en este vapor de agua es directamente proporcional a todas ellas, teniendo un aporte positivo o de incorporación tanto la radiación solar ( $0,20 \text{ mBq/m}^3$  por cada  $\text{W/m}^2$ ), como la humedad relativa ( $0,92 \text{ mBq/m}^3$  por cada porcentaje de humedad) del entorno y, un efecto de eliminación para la temperatura del embalse ( $-1,68 \text{ mBq/m}^3$  por cada grado centígrado de dicha agua) y la velocidad media de los vientos ( $-13 \text{ mBq/m}^3$  por cada  $\text{m/s}$  de velocidad de los vientos) . Este modelo consigue reproducir el 93,9 % de la varianza de los datos, con unos residuos que presentan una distribución básicamente aleatoria y próxima a cero; a excepción de una serie de niveles de actividad coincidentes con momentos de paradas en la CNA.

7. Desde la puesta en funcionamiento de las torres de refrigeración de la Central Nuclear de Almaraz, a partir del verano de 2012, se observa que en el año 2013 se ha producido un ligero aumento en los niveles de tritio en el vapor de agua de la atmósfera de Almaraz de  $19 \pm 5 \text{ mBq/m}^3$ , con respecto a los años precedentes. Aspecto éste que deberá confirmarse con posteriores estudios para un mayor intervalo temporal.

## Capítulo 3

# **RADIONUCLEIDOS DE ORIGEN COSMOGÉNICO PRESENTES EN LOS AEROSOLES DE LA ATMÓSFERA DE CÁCERES**

### **3.1.- Introducción:**

La presencia de radionucleidos en la atmósfera es debida a distintos orígenes, entre los que se encuentran los generados por la interacción de rayos cósmicos con distintos átomos presentes en la misma, y que se denominan radionucleidos cosmogénicos, la difusión en la atmósfera de radionucleidos naturales descendientes del radón, los efluentes de las instalaciones industriales, o la resuspensión de partículas desde el suelo. Dado sus distintos orígenes, la concentración de los radionucleidos presentes en la atmósfera de cada emplazamiento dependerá entre otras causas de su localización geográfica (latitud), de sus condiciones climáticas y del tipo de actividades desarrolladas en el mismo. En la tabla 1 se presentan a modo de ejemplo, los órdenes de magnitud de las concentraciones de radionucleidos en el aire superficial, encontrados en la bibliografía para emplazamientos exentos de término fuente de origen artificial activo. Como se puede observar, el radón y sus descendientes presentan las mayores concentraciones en el aire. También cabe destacar la gran variación, incluso de 9 ó 10 órdenes de magnitud, existente entre las concentraciones del radionucleido más abundante,  $^{222}\text{Rn}$ , y la de los menos presentes, como son el  $^{241}\text{Am}$  y el  $^{239+240}\text{Pu}$ .

El  $^{7,10}\text{Be}$  y el  $^{22}\text{Na}$  son radionucleidos de origen cosmogénico, con unos periodos de semivida relativamente cortos. Para el  $^7\text{Be}$  de 53,2 días y de 2,6 años para el  $^{22}\text{Na}$  y, un periodo de semivida mayor para el  $^{10}\text{Be}$ , de  $1,51 \cdot 10^6$  años. Éstos se forman principalmente en la alta troposfera y baja estratosfera por procesos de espalación con átomos más ligeros de la atmósfera, tales como el nitrógeno, oxígeno o carbono, en el caso del  $^7\text{Be}$  y el argón en el caso del  $^{22}\text{Na}$ . Unos dos tercios del  $^7\text{Be}$  se producen en la estratosfera, en la cual la intensidad de los rayos cósmicos es más elevada, mientras que el resto del  $^7\text{Be}$  se produce en la parte más elevada de la troposfera (Dueñas et al., 2011; Lal and Peters, 1967; Zanis et al., 2003).

Después de su formación, el  $^7\text{Be}$  se asocia a partículas de aerosoles con un diámetro aerodinámico medio de 0,76-1,78  $\mu\text{m}$  (Papastefanou et al., 1995). Las intrusiones de masas de aire, seguidas de la deposición seca y fundamentalmente la húmeda, son los principales procesos de transferencia de  $^7\text{Be}$  a la superficie terrestre. Por ello, el  $^7\text{Be}$  se usa como trazador en los intercambios de masas de aire entre la baja estratosfera y la alta troposfera y, en los procesos de transporte de los mismos.

Debido a estos procesos de intercambio en la atmósfera, la concentración del  $^7\text{Be}$  varía notablemente en el aire superficial en función de la estación del año, aún cuando la tasa de producción del mismo en la atmósfera permanece prácticamente

constante (Durana et al., 1996; Masarik and Beer, 1999). Comparado con el  $^7\text{Be}$ , la concentración de  $^{22}\text{Na}$  es unos cuatro órdenes de magnitud inferior a la de  $^7\text{Be}$ , debido fundamentalmente a la menor concentración del argón atmosférico y a la mayor energía umbral de su proceso de espalación ( $E_T \approx 200 \text{ MeV}$ ), comparada con la del oxígeno ( $E_T \approx 30 \text{ MeV}$ ).

Por otro lado, las variaciones observadas en las concentraciones de radionucleidos cosmogénicos ( $^7\text{Be}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ) tienen un carácter estacional y están correlacionadas con la intensidad de la radiación cósmica, con la cantidad de precipitación y con los intercambios de aire entre distintas partes de la atmósfera (Baeza et al., 1996, El-Husseini et al., 2001, Grabowska et al., 2003).

En este sentido, la precipitación como lluvia o nieve (más efectiva esta última) es un mecanismo de eliminación de ambos de la atmósfera, al limpiar ésta y depositar el  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$  asociado a los aerosoles atmosféricos sobre el suelo.

Origen natural				Origen antropogénico	
Radionucleido	Bq/m <sup>3</sup>	Radionucleido	Bq/m <sup>3</sup>	Radionucleido	Bq/m <sup>3</sup>
$^{22}\text{Na}$	$10^{-7}$ - $10^{-6}$	$^{40}\text{K}$	$10^{-6}$ - $10^{-5}$	$^{137}\text{Cs}$	$10^{-7}$ - $10^{-6}$
$^7\text{Be}$	$10^{-3}$	$^{222}\text{Rn}$	$10^{-1}$ -1	$^{239+240}\text{Pu}$	$10^{-10}$ - $10^{-8}$
$^{226}\text{Ra}$	$10^{-6}$ - $10^{-5}$	$^{210}\text{Pb}$	$10^{-4}$ - $10^{-3}$	$^{241}\text{Am}$	$10^{-9}$ - $10^{-8}$
$^{238}\text{U}$	$10^{-7}$ - $10^{-6}$	$^{212}\text{Pb}$	$10^{-3}$ - $10^{-1}$	$^{90}\text{Sr}$	$10^{-6}$
$^{232}\text{Th}$	$10^{-7}$	$^{214}\text{Pb}$	$10^{-3}$	$^3\text{H}$	1-10
$^3\text{H}$	1-10				

**Tabla 3.1. Órdenes de magnitud de las concentraciones en aire de radionucleidos de origen natural y antropogénico para entornos exentos de término fuente artificial activo. (Carvalho, 1995; Kolb, 1995; Yukoni et al., 1995; JRC, 1997; Lee et al., 1998; Mason et al., 1998; Sheets et al., 1999; Lee, 2002; CSN, 2003; Grabowska et al., 2003; Kimura et al., 1997).**

### **3.2.- Recolección de aerosoles mediante bomba de alto volumen ASS-500C:**

Dados los previsiblemente bajos niveles de actividad de los radionucleidos presentes en un emplazamiento exento de término fuente activo de radionucleidos artificiales, como es la Facultad de Veterinaria de la Universidad de Extremadura, la determinación de actividad neta en los aerosoles requiere la captación de una gran cantidad de los mismos, para lo que es necesario hacer pasar un alto volumen de aire a través de un filtro en el que se retengan. El equipo de captación de aerosoles usado es una estación de alto flujo de la marca PTI, modelo ASS-500C, montada sobre una base de hormigón para minimizar las vibraciones, situada en un recinto de acceso controlado, sito en la Facultad de Veterinaria (figura 3.1), cuyas coordenadas son: 39º 30' 20" N, 6º 20' 22" O.



**Figura. 3.1. Vistas del recinto acotado y de la estación de alto flujo ASS-500C.**

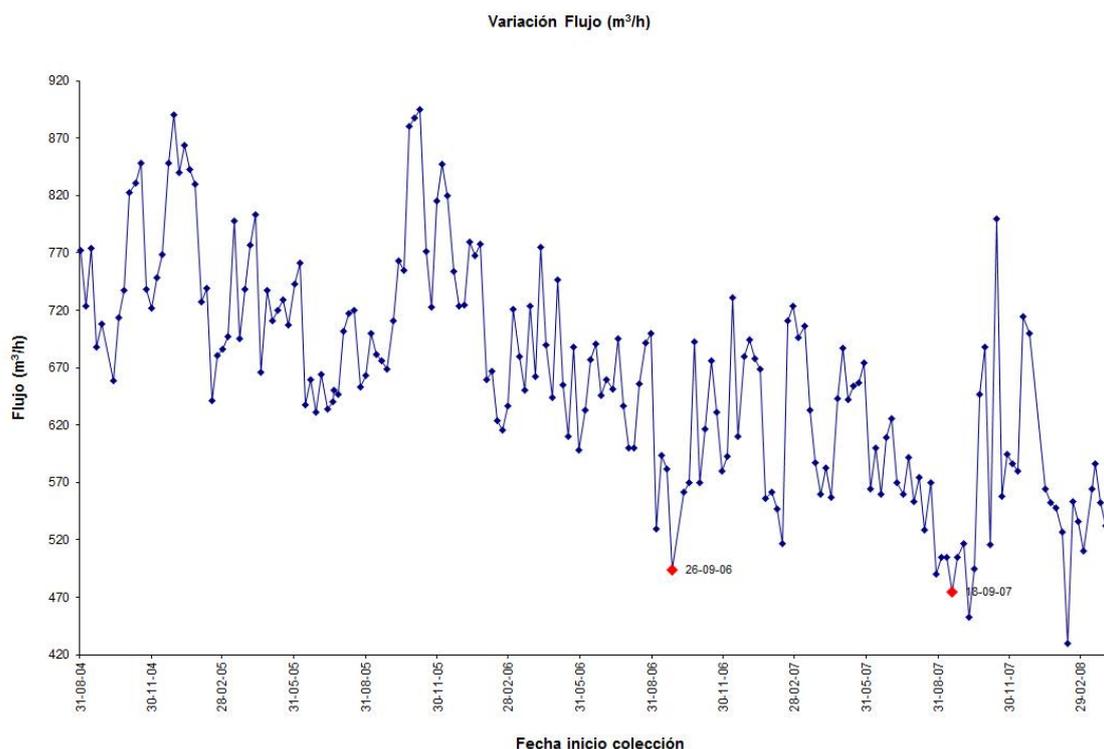
La estación de alto flujo tiene una dimensiones de 88.5x88.5 cm de base, 1.84 m de altura y un peso de 120 Kg. El aire aspirado entra por la parte superior de la estación, por debajo del cubre filtro, y pasa a través de éste. Dispone de dos calentadores de infrarrojos colocados unos centímetros por encima del filtro, para mantenerlo seco e impedir que se colmate por efecto de la humedad y disminuya el flujo de aire. Tras su paso por el filtro, el aire se expulsa mediante un tubo de dos metros de longitud. La estación consta de una bomba de aire de alta presión tipo WPMA-112F/WPMA-125F, de 1.7-2.9 kW de potencia. Además consta de un flujímetro y de contadores de tiempo de funcionamiento, de volumen parcial y total aspirados.

Los filtros utilizados son G3 Petrianov tipo FPP15-1.5, de policloruro de vinilo. Su eficiencia de adsorción de aerosoles varía entre el 95.600 y el 99.998 % para aerosoles de diámetro comprendido entre 0.30 y 1.25  $\mu\text{m}$  con una velocidad de aire lineal que varíe entre 0.25 y 4 m/s con una diferencia de presión de 500-9300 Pa. El filtro usado es un cuadrado de dimensiones 440x440 mm, siendo su superficie de 193600  $\text{mm}^2$  (figura 3.2). La recolección de las muestras tiene una periodicidad semanal, verificándose diariamente el funcionamiento de la estación, anotando fecha y hora de la misma, flujo aire aspirado, y volumen parcial y total en la correspondiente hoja de toma de muestras de aerosoles que dispone el LARUEX a tal efecto. A efectos de corrección de actividad por decaimiento, se ha considerado como fecha cero, aquella en la que aspiró la mitad del volumen total.



**Figura 3.2. Vistas del filtro de captación de aerosoles de alto flujo.**

En la figura 3.3 se muestra la evolución temporal del flujo medio registrado en el periodo 2004-2008. Como se puede comprobar, existe una dependencia estacional del flujo de aire a través del filtro y, por lo tanto, del volumen total aspirado, siendo en general en los meses de invierno los que se recolectaron un mayor caudal, al haber menor concentración de aerosoles, como consecuencia de la resuspensión de las partículas de suelo.



**Figura 3.3. Evolución temporal del flujo de aire aspirado en el periodo 2004-2008. En rojo se muestran las fechas en las que se realizó el mantenimiento de la bomba de alto flujo.**

Así mismo, durante el primer año de funcionamiento de la bomba se observó un descenso del caudal de aire aspirado, como consecuencia del desgaste mecánico debido a su uso ininterrumpido. Para evitar, posibles malfuncionamientos de la estación, se procedió anualmente a la revisión de la bomba de aspiración en una empresa especializada. Estas actuaciones se han reflejado en la figura 3.3 mediante puntos rojos. El periodo de recolección de muestras de aerosoles analizados en este capítulo es de 2004 a 2011, es decir, desde la puesta en funcionamiento del captador de alto flujo, hasta las fechas del impacto en Cáceres de la nube procedente del accidente de Fukushima, el cual será abordado en el capítulo 5 de esta memoria.

### **3.3.-Preparación de las muestras:**

Tras la recolección de cada muestra de aerosoles, se procede a la preparación de la misma para determinar su contenido radioactivo. En primer lugar, se cuantifica

la masa de aerosoles depositada en cada filtro y el volumen de aire correspondiente, así como la fecha cero de aspiración, para su corrección por desactivación.

El tratamiento posterior de cada filtro depende de los ensayos a que éste vaya a ser sometido. En el caso de que éste sea el análisis espectrométrico gamma, se corta el filtro en pedazos pequeños de aproximadamente 1 cm<sup>2</sup> y, se prensa a 400 bares para formar una pastilla de 6,7 cm de diámetro y 1,2 cm de altura, geometría para la que está calibrado en eficiencias el detector de germanio usado, cuyas características se describen a continuación.

En el supuesto de que sobre cada filtro de recolección semanal o sobre un conjunto de ellos (identificados como filtro mensual, trimestral, etc.) se vaya a determinar algún radionucleido emisor alfa o beta, se calcina éste inicialmente a 400°C para eliminar el soporte y la materia orgánica, que suele interferir en los procesos de separación radioquímica y si el procedimiento radioquímico así lo requiere, se calcina antes del inicio de dicha separación radioquímica a 600°C, durante el tiempo preciso para obtener una ceniza homogéneamente blanquecina.

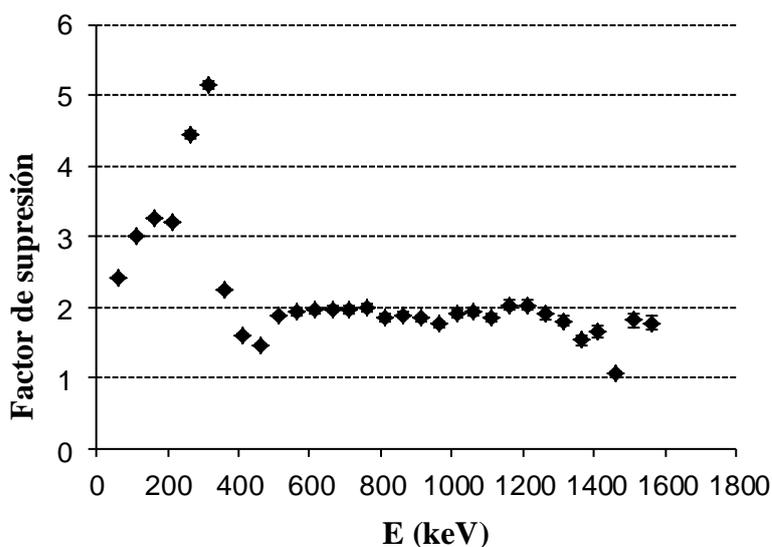
### **3.3.1.-Espectrometría y:**

La medida de aerosoles mediante espectrometría  $\gamma$  se realizó utilizando un detector de Ge(Hp), tipo N con ventana de berilio, marca Canberra modelo GR2520-7500SL, y eficiencia relativa del 25 %. La resolución para el pico de 1332 keV de <sup>60</sup>Co es de 1.87 keV y la relación pico-Compton es de 57.5:1. El potencial de trabajo es de -3500V, proporcionado por una fuente de alta tensión Canberra 3105. El detector se mantiene a una temperatura de operación de 70 K gracias a su contacto térmico de cobre que se introduce verticalmente en un criostato estándar de nitrógeno líquido. Dicho detector tenía asociado un dispositivo de supresión de efecto Compton, formado por un anillo centelleador de NaI (Tl), alrededor del detector de Ge y un tapón centelleador, también de NaI(Tl), en la parte superior del detector, de forma que la distancia de la ventana de berilio al extremo del tapón centelleador es de 35 mm, obteniendo así la máxima eficiencia, en lo que a ángulo sólido entre ambos detectores se refiere. La electrónica asociada, descrita exhaustivamente en (López et al., 1998, Guillén, 2002), vetaba las señales que se producían simultáneamente en el detector primario de Ge y en los detectores secundarios (anillo+tapón). De forma que se produce una disminución del fondo asociado a los radionucleidos emisores y monoenergéticos, como es el caso del <sup>137</sup>Cs. Para evaluar la supresión alcanzada por dicho dispositivo se calcula el factor de supresión Compton (FSC) como el cociente de la suma de las cuentas registradas en un determinado intervalo de energía, para el

espectro normal y el suprimido. Según esta definición, dicho factor será tanto mayor, cuanto más efectiva sea la supresión del efecto Compton.

$$FSC = \frac{cps\ ROI\ espectronormal}{cps\ ROI\ espectro\ suprimido}$$

En la figura 3.4 se muestra el factor de supresión correspondiente a una muestra de aerosoles. Como se puede observar, dicho factor en la región del  $^{137}\text{Cs}$  (661.7 keV) es aproximadamente de 2; mientras que los mayores factores de supresión corresponden a energías directamente afectadas por el efecto Compton generado por el  $^7\text{Be}$  (477 keV), que presenta sistemáticamente el fotopico con el mayor número de cuentas en una muestra de aerosoles. En definitiva, este dispositivo permite mejorar notoriamente la sensibilidad de la medida para radionucleidos monoenergéticos, al reducir el fondo del mismo, mejorando el límite de detección para los radionucleidos con bajos niveles de actividad.



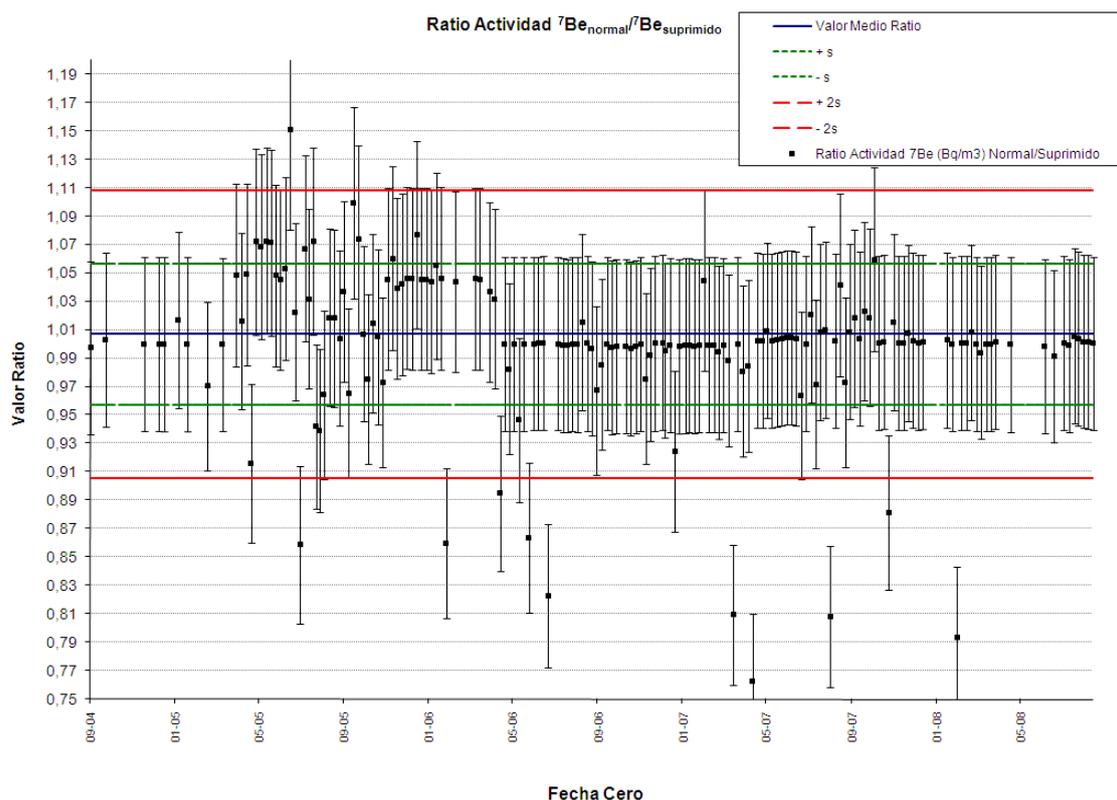
**Figura 3.4. Factores de supresión obtenidos con el espectrómetro y con el dispositivo de supresión de efecto Compton.**

Por esta razón se ha tomado el espectro con supresión parcial de Compton (espectro suprimido) para radionucleidos como:  $^7\text{Be}$ ,  $^{40}\text{K}$  y  $^{137}\text{Cs}$ , siempre y cuando se cumpla el siguiente criterio de calidad, basado en el cociente de actividades de los fotopicos en los espectros suprimido y normal, es decir, con el dispositivo supresor de Compton activo e inactivo respectivamente. En condiciones óptimas de funcionamiento del supresor de Compton, este cociente con sus incertidumbres debe

abarcar a la unidad. A modo de ejemplo, en la figura 3.5 se muestran los valores de dicho cociente para el  $^7\text{Be}$  en el espectro normal y en el suprimido, siendo el valor medio obtenido de  $1.01 \pm 0.05$  (S.D.). Este radionucleido se ha usado sistemáticamente para verificar el funcionamiento del supresor de Compton, ya que es el que presenta los mayores niveles de actividad en las muestras de aerosoles (ver tabla 3.1). El criterio seguido para considerar el espectro normal o el suprimido es el siguiente:

- a) Si el ratio  $A(^7\text{Be}_{\text{normal}})/A(^7\text{Be}_{\text{suprimido}})$  está dentro del intervalo  $[\text{V.M.}-2\sigma, \text{V.M.}+2\sigma]$ , se considera el espectro suprimido para el cálculo de  $^7\text{Be}$ ,  $^{40}\text{K}$  y  $^{137}\text{Cs}$ .
- b) Si el ratio  $A(^7\text{Be}_{\text{normal}})/A(^7\text{Be}_{\text{suprimido}})$  está fuera del intervalo  $[\text{V.M.}-2\sigma, \text{V.M.}+2\sigma]$ , se considera el espectro normal para el cálculo de dichos radionucleidos.

El grado de cumplimiento de este criterio es alto, tal y como se puede comprobar en la figura 3.5, de forma que tan sólo en el 5.4 % de las medidas se ha utilizado el espectro normal, en lugar del suprimido, para establecer el valor definitivo de la actividad de los tres precitados radionucleidos monoenergéticos gamma.



**Figura 3.5. Cociente entre las actividades de  ${}^7\text{Be}$  determinadas en los espectros normal y suprimido para la verificación del correcto funcionamiento del dispositivo supresor de efecto Compton.**

Para la determinación de los niveles de actividad de  ${}^{22}\text{Na}$  (1274.53 keV + 2 emisiones en rayos X) y  ${}^{210}\text{Pb}$  (46.54 keV + 14 emisiones en rayos X), entre otros, se ha considerado de forma sistemática el resultado proporcionado tras el análisis del espectro normal.

### 3.3.2.- Separación radioquímica para la extracción de ${}^{10}\text{Be}$ :

Las separaciones radioquímicas de Be se realizan para medir el contenido de  ${}^{10}\text{Be}$  en muestras seleccionadas de aerosoles, mediante AMS (Accelerator Mass Spectrometry). El procedimiento para la preparación de la muestra consiste en primer lugar, en tomar una alícuota de la muestra de aerosoles, ya calcinada a 400 °C, equivalente a unos 30000 m<sup>3</sup>, a la que se le adiciona una cantidad conocida de una disolución portadora de Be estable (1 mg/mL) y se realiza una digestión ácida con HCl 8M. A continuación, se deseca la muestra bajo lámpara de infrarrojos y se

acondiciona en medio HCl 1 M para su purificación mediante una resina de intercambio iónico Dowex 5WX8-100, que retiene el aluminio presente en la muestra. Posteriormente, se procede a la formación de hidróxido de berilio mediante la adición de NH<sub>3</sub>. Finalmente, se procede a la obtención de óxido de berilio, mediante la combustión del hidróxido de berilio formado a 600 °C durante 2-3 horas. El rendimiento químico se determina mediante el análisis del contenido en <sup>7</sup>Be de la muestra por espectrometría γ. La determinación del contenido de <sup>10</sup>Be se realizó en el Centro Nacional de Aceleradores de Sevilla.

### **3.4.- Análisis del contenido de radionucleidos cosmogénicos:**

Los radionucleidos cosmogénicos analizados sistemáticamente en las muestras de aerosoles han sido: <sup>7</sup>Be y <sup>22</sup>Na. Para complementar estos análisis, se han realizado separaciones radioquímicas de <sup>10</sup>Be en 14 muestras seleccionadas de alícuotas de filtros acumulados mensualmente.

Cabe destacar que el análisis de los radionucleidos emisores gamma determinados en los filtros de alto caudal, se han efectuado mediante procedimientos amparados por la acreditación que el LARUEX posee, n<sup>o</sup> 628/LE1260, en base a la norma UNE-EN ISO/IEC 17025 (ISO, 2005).

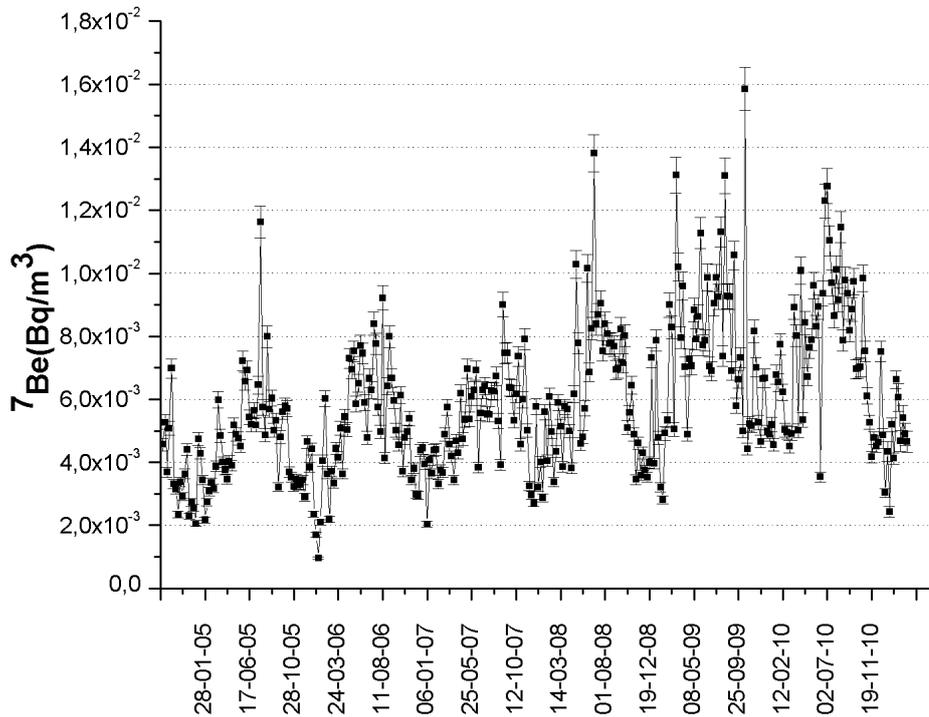
#### **3.4.1. <sup>7</sup>Be:**

En la figura 3.6 se muestra la evolución temporal de los niveles de actividad medidos para el <sup>7</sup>Be, expresada en Bq/m<sup>3</sup>, en los filtros recolectados semanalmente durante el periodo comprendido entre septiembre de 2004 a marzo de 2011. Este radionucleido se ha detectado en la totalidad de los filtros analizados, siendo el valor medio  $(5.8 \pm 2.3 \text{ (S.D.)}) \cdot 10^{-3} \text{ Bq/m}^3$ , dentro del rango de variación  $(0.94 - 15.8) \cdot 10^{-3} \text{ Bq/m}^3$ . Como se puede observar, estos niveles de actividad son del mismo orden de magnitud que los que se han reportado en la bibliografía. Una recopilación de dichos resultados se presenta en la tabla 3.2.

País	Rango ${}^7\text{Be}$ ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ )	Referencias
Australia	$(0.6 - 10.3) \cdot 10^{-3}$	(Doering et al., 2008)
Francia	$(3 - 9) \cdot 10^{-3}$	(Bourcier et al., 2011)
España	$(0.88 - 12.1) \cdot 10^{-3}$	(Baeza et al. 1996, Dueñas et al., 2003; Hernández et al., 2008; Alegría et al., 2010)
Japón	$(0.72 - 7.44) \cdot 10^{-3}$	(Akata et al., 2008; Abe et al., 2010)
India	$(2.4 - 11.8) \cdot 10^{-3}$	(Rangarajan et al., 2004)
Italia	$(0.05 - 15.8) \cdot 10^{-3}$	(Tositti et al., 2014)
Mónaco	$(0.93 - 13.1) \cdot 10^{-3}$	(Pham et al., 2011)
Reino Unido	$(0.63 - 6.4) \cdot 10^{-3}$	( Likuku, 2006)
Pakistán	$(0.77 - 11.3) \cdot 10^{-3}$	(Khan et al., 2008; Ali et al., 2011)
Polonia	$(0.5 - 9) \cdot 10^{-3}$	(Błażej et al., 2014)
Portugal	$(0.1 - 15) \cdot 10^{-3}$	(Carvalho et al., 2013)
USA	$(0.63 - 20.4) \cdot 10^{-3}$	(Feely et al., 1989; Daish et al., 2005)

**Tabla 3.2. Rangos de variación de la concentración de  ${}^7\text{Be}$ , expresados en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , detectados en varios países.**

Además, como se puede apreciar en la figura 3.6, este nivel de actividad no es constante con el tiempo, sino que presenta unas claras variaciones estacionales, con valores máximos en los meses de primavera y verano y mínimos en los de otoño e invierno. Esta periodicidad se puede cuantificar mediante el análisis del periodograma de la serie temporal del  ${}^7\text{Be}$  (ver figura 3.7), en donde se observa que la frecuencia más intensa es de  $5,23 \cdot 10^{-4}$  y corresponde a un periodo de 52 semanas ( $f = 0.019 \text{ semana}^{-1}$ ), es decir, periodicidad anual. Hay otra frecuencia intensa de  $3,18 \cdot 10^{-4}$ , que corresponde a un periodo de 311 semanas (equivalente a 6 años), no poseyendo ésta ningún significado ya que se corresponde a todo el periodo estudiado.

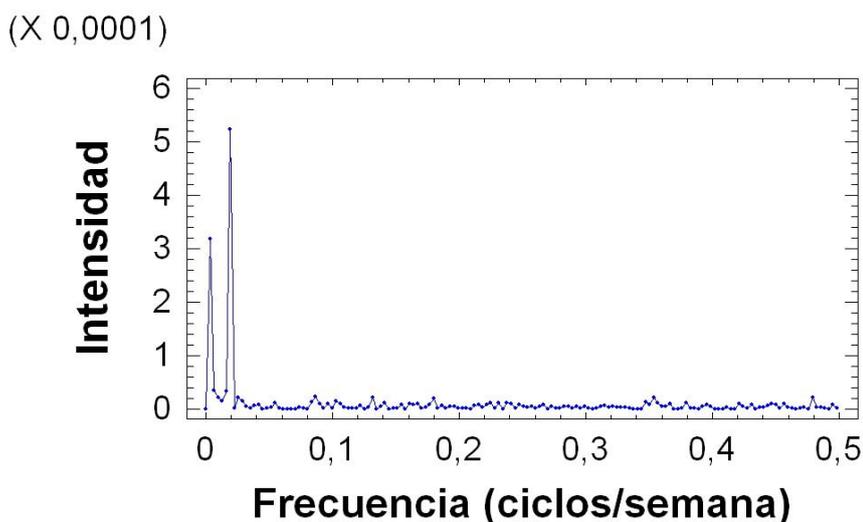


**Figura 3.6 Evolución temporal de los niveles de actividad de  ${}^7\text{Be}$ , expresado en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , durante el periodo Septiembre de 2004 a Marzo de 2011.**

La citada periodicidad anual está unida a una sistemática que se muestra en la tabla 3.2, en la que se recopilan los valores medios y rangos detectados para el  ${}^7\text{Be}$  en las diferentes estaciones del año. Como fácilmente puede observarse, los menores valores se registran durante el Invierno, hecho éste fácilmente correlacionable con el menor número de horas de sol durante dicho periodo y como consecuencia, con la menor intensidad total con la que los rayos solares que producen en la atmósfera este radionucleido cosmogénico, inciden sobre la misma, confirmando la importancia que el Sol tiene como término fuente productor de este tipo de isótopos radiactivos.

	Primavera	Verano	Otoño	Invierno
N	78	83	89	86
<sup>7</sup> Be (Bq/m <sup>3</sup> )	$(6.4 \pm 1.9) \cdot 10^{-3}$	$(7.5 \pm 2.2) \cdot 10^{-3}$	$(5.1 \pm 2.0) \cdot 10^{-3}$	$(4.7 \pm 1.9) \cdot 10^{-3}$
Rango (Bq/m <sup>3</sup> )	$(3.4-11.3) \cdot 10^{-3}$	$(3.2-13.8) \cdot 10^{-3}$	$(2.3-15.9) \cdot 10^{-3}$	$(0.94-13.1) \cdot 10^{-3}$

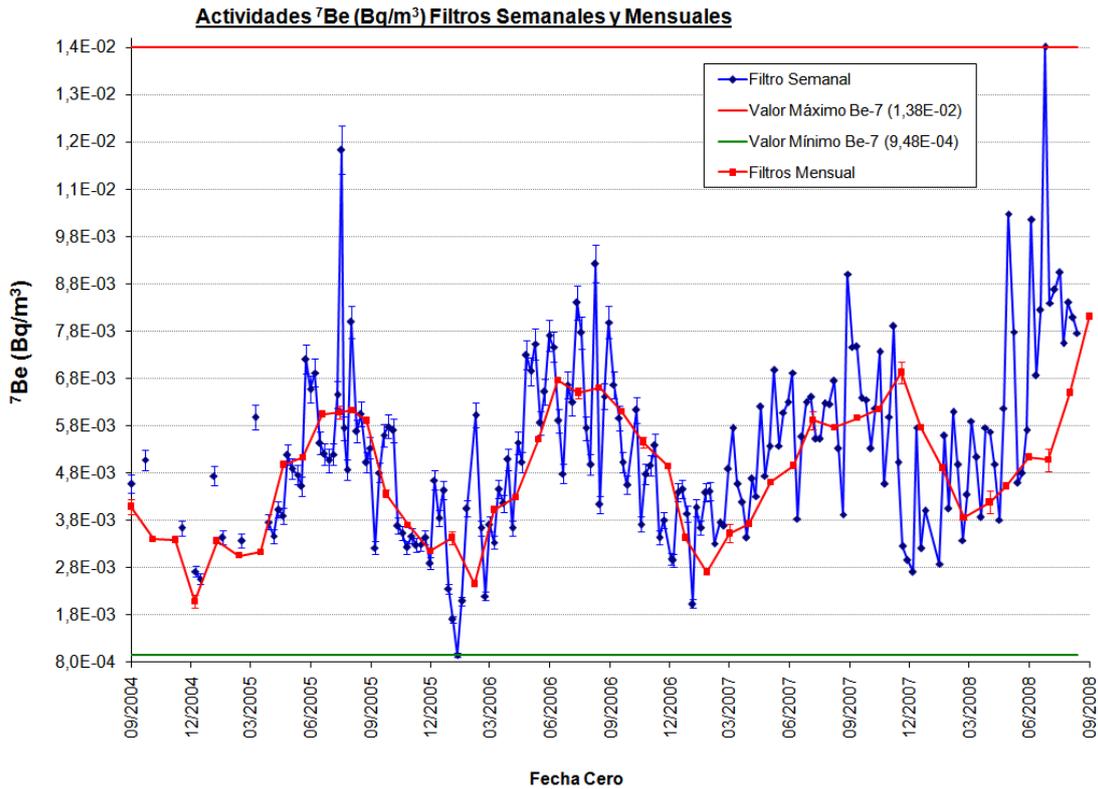
**Tabla 3.2. Valor medio, desviación estándar y rango de valores de la concentración de <sup>7</sup>Be, expresada en Bq/m<sup>3</sup>, en las diferentes estaciones del año. N es el número de filtros en los que se ha detectado actividad neta.**



**Figura 3.7. Periodograma correspondiente a la serie temporal de la concentración de <sup>7</sup>Be durante los años 2005 a 2010.**

En la medida de la concentración de radioactividad en los aerosoles, se han considerado dos tipos de alícuotas diferentes, el análisis de los filtros recolectados semanalmente y el de los acumulados mensualmente para el análisis de aquellos radionucleidos en los que es sabido, ver tabla (3.1) que se presentan en entornos exentos de términos fuente artificiales activos, con menor concentración. A fin de asegurar la calidad del procesamiento de las muestras al realizar el acumulado mensual de las mismas, se realizó una comparación entre las concentraciones de <sup>7</sup>Be

en los filtros recolectados semanalmente y en los acumulados mensualmente, para un periodo de cuatro años de muestreo (2004-2008). En la figura 3.8 se muestra la evolución temporal de los niveles de actividad de  $^7\text{Be}$  detectados en ambos tipos de muestra. Como era de esperar, ambas series de resultados siguen la misma tendencia temporal, siendo las variaciones más suavizadas en el caso del acumulado mensual.

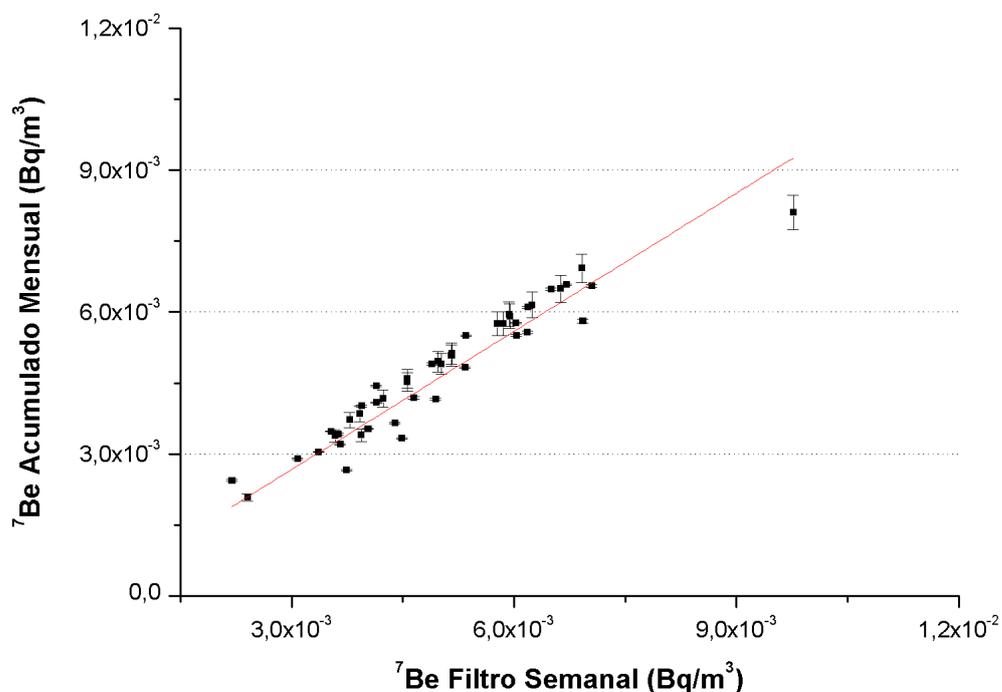


**Figura 3.8. Relación entre la evolución temporal de los niveles de actividad de  $^7\text{Be}$ , expresadas en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , detectadas en los filtros recolectados semanalmente y en los acumulados mensualmente.**

Evidentemente, ambas series de concentraciones están íntimamente relacionadas, tal y como se muestra en la figura 3.9, existiendo entre ambas la siguiente correlación lineal

$${}^7\text{Be}_{\text{mensual}} = (0.91 \pm 0.04) \cdot {}^7\text{Be}_{\text{semanal}} + (1.5 \pm 2.0) \cdot 10^{-4} ; r = 0.961 \quad (3.1)$$

siendo la pendiente muy próxima a la unidad, lo que constata que las actividades de las muestras acumuladas mensualmente son fiel reflejo de los promedios de actividad de las muestras recolectadas semanalmente.



**Figura 3.9. Correlación entre las concentraciones de  ${}^7\text{Be}$  detectadas en los filtros recolectados cada semana y los acumulados mensualmente, ambas expresadas en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ .**

La variabilidad estacional de la concentración de  ${}^7\text{Be}$  en la atmósfera de Cáceres debe también ser un reflejo de las condiciones meteorológicas que poseía el entorno en dichos momentos, condiciones que también poseen una marcada variabilidad estacional. Es por ello que para entender dicha dinámica se han tenido en cuenta las evoluciones temporales de los siguientes parámetros meteorológicos: a) radiación solar total, R; b) temperatura, T; c) precipitación, L; y d) presión, P. Todos ellos son valores medios mensuales, facilitados por la AEMET y correspondientes a su estación de Cáceres. Las figuras 3.10 a 3.13 muestran las correlaciones existentes entre cada una de estas variables y el valor de la actividad del  ${}^7\text{Be}$  obtenido en las muestras acumuladas mensualmente.

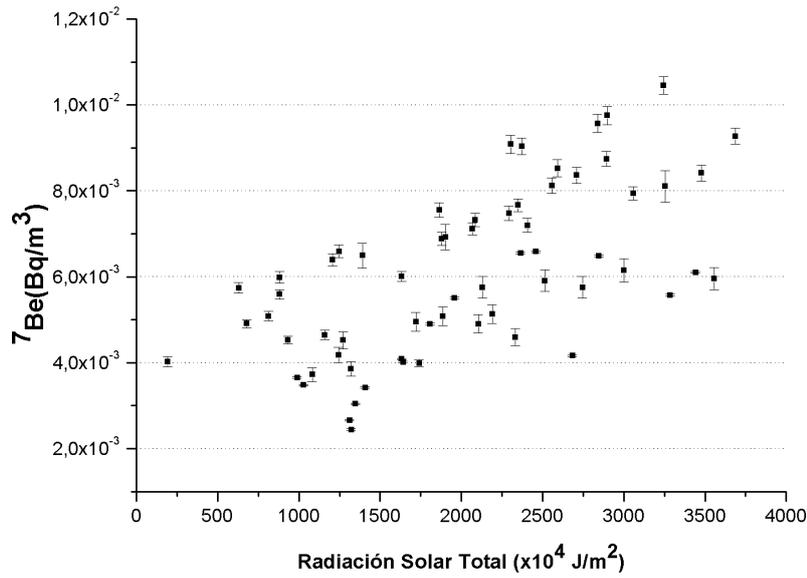


Figura 3.10. Correlación entre los valores medios mensuales de la Radiación Solar Total, expresada en  $10^4 \text{ J/m}^2$ , y la concentración mensual de  ${}^7\text{Be}$ , expresada en  $\text{Bq/m}^3$ .

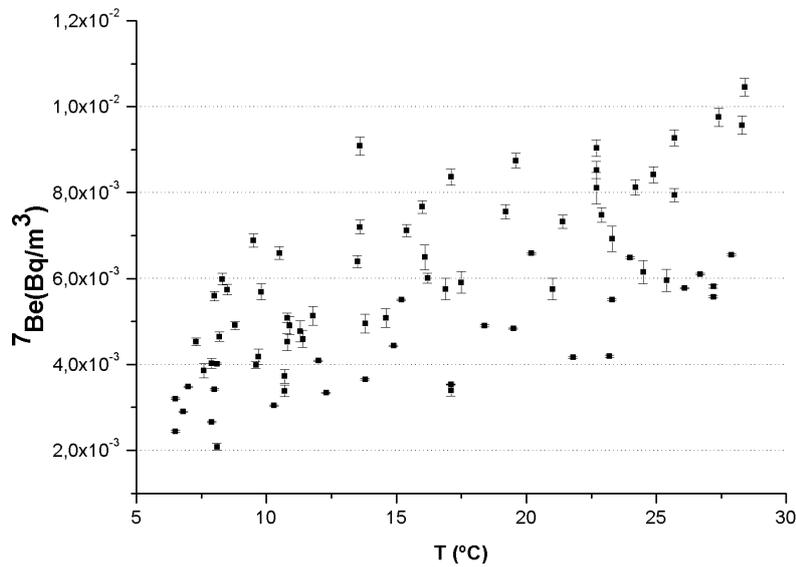


Figura 3.11. Correlación entre los valores medios mensuales de la Temperatura, expresada en  $^{\circ}\text{C}$ , y la concentración mensual de  ${}^7\text{Be}$ , expresada en  $\text{Bq/m}^3$ .

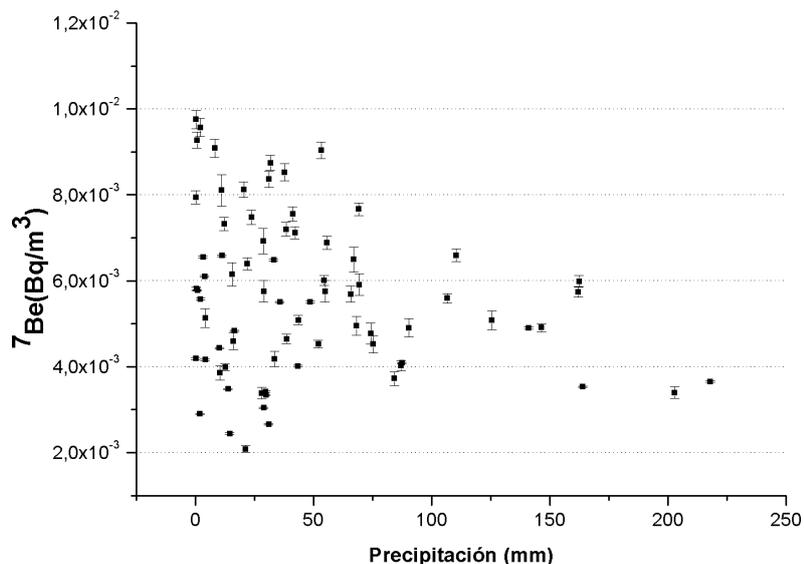


Figura 3.12. Correlación entre los valores medios mensuales de la Precipitación, expresada en mm, y la concentración mensual de  $^7\text{Be}$ , expresada en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ .

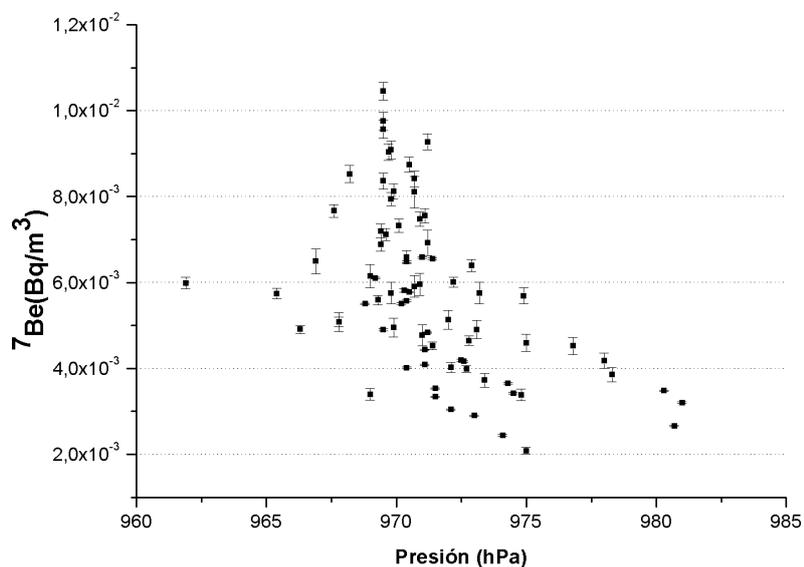


Figura 3.13. Correlación entre los valores medios mensuales de la Presión, expresada en hPa, y la concentración mensual de  $^7\text{Be}$ , expresada en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ .

Como se observa en dichas figuras, la concentración de  ${}^7\text{Be}$  presenta una correlación parcial con cada una de las variables meteorológicas consideradas, mostrándose los correspondientes ajustes lineales en las ecuaciones 3.2 a 3.5.

$${}^7\text{Be}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (1.5 \pm 2.2) \cdot 10^{-6} \cdot R(10^4 \text{ J}/\text{m}^2) + (3.1 \pm 0.5) \cdot 10^{-5} ; r = 0.641 \quad (3.2)$$

$${}^7\text{Be}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (1.84 \pm 0.24) \cdot 10^{-4} \cdot T(^{\circ}\text{C}) + (2.7 \pm 0.4) \cdot 10^{-3} ; r = 0.651 \quad (3.3)$$

$${}^7\text{Be}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (-9 \pm 4) \cdot 10^{-6} \cdot \text{Ll}(\text{mm}) + (6.1 \pm 0.3) \cdot 10^{-3} ; r = -0.240 \quad (3.4)$$

$${}^7\text{Be}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (-3.1 \pm 0.6) \cdot 10^{-4} \cdot P(\text{hPa}) + (0.31 \pm 0.06) ; r = -0.510 \quad (3.5)$$

donde R es la radiación solar total en la escala  $10^4 \text{ J}/\text{m}^2$ ; T la temperatura media mensual en  $^{\circ}\text{C}$ ; Ll la precipitación total mensual en mm; y P la presión media mensual en hPa.

Las dependencias aquí observadas de la concentración de  ${}^7\text{Be}$  con las variables meteorológicas son análogas a las detectadas por otros autores, es decir, un aumento de la concentración con la radiación solar, con el ciclo solar y con la temperatura a nivel del suelo; y una disminución de la misma con la humedad y con la precipitación (Alegría et al., 2010; Ali et al., 2011; Carvalho et al., 2013; Błażej et al., 2014). En nuestro caso, las variables meteorológicas que condicionan en mayor medida a la concentración atmosférica de  ${}^7\text{Be}$  son la radiación solar y la temperatura, estando entre sí realmente muy correlacionadas, pudiéndolas considerar a estos efectos, como la misma variable meteorológicas. Por su parte, la precipitación tiene un efecto negativo de sobre la producción de  ${}^7\text{Be}$ , ya que aquella produce un lavado de la atmósfera, con la consiguiente deposición eficiente de los aerosoles que contienen a los radionucleidos de  ${}^7\text{Be}$ , sobre la capa superficial del suelo. Es por este mecanismo que se puede detectar niveles netos de actividad del  ${}^7\text{Be}$  en la vegetación tras una lluvia reciente (Baeza et al., 2004; Krmar et al., 2007).

#### 3.4.2.- ${}^{10}\text{Be}$ :

La separación radioquímica de  ${}^{10}\text{Be}$  se realizó en 14 muestras acumuladas mensualmente de aerosoles seleccionadas, y se realizó la medida en el Centro Nacional de Aceleradores (CNA) de Sevilla (Ruíz, 2007). En la tabla 3.3 se listan las concentraciones de  ${}^{10}\text{Be}$  detectadas en las muestras analizadas. El nivel de concentración de  ${}^{10}\text{Be}$  se ha calculado mediante la ecuación de 3.6

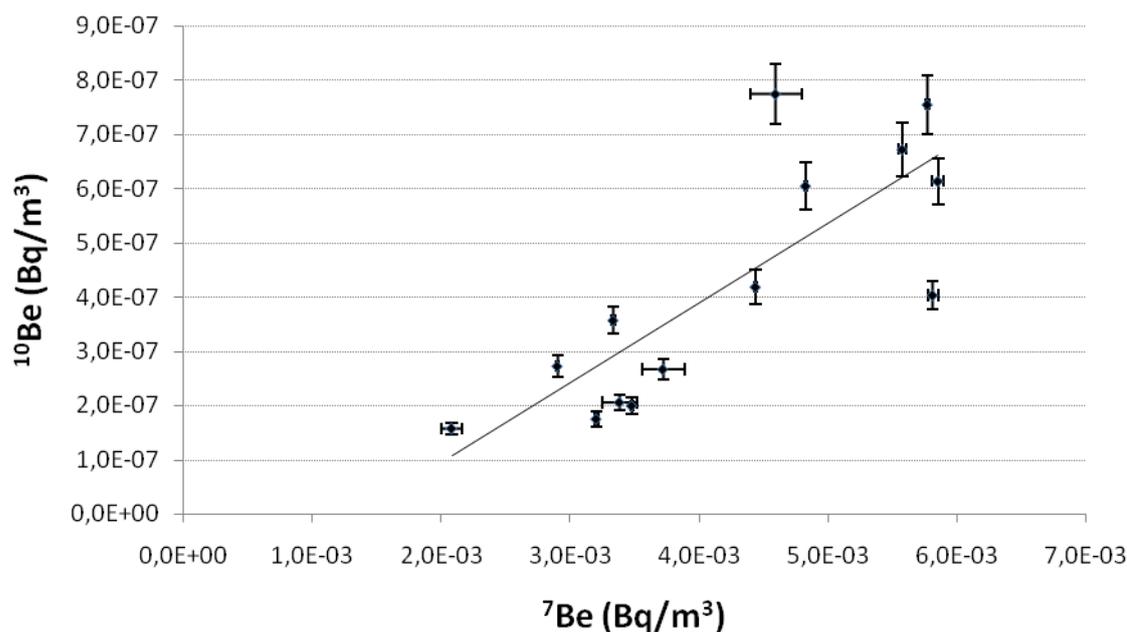
$$A({}^{10}\text{Be}) = \frac{\ln 2}{T_{1/2}({}^{10}\text{Be})} \cdot \text{Ratio} \left( \frac{{}^{10}\text{Be}}{{}^9\text{Be}} \right) \cdot R_q \cdot N_A \cdot \frac{m(\text{Be estable})(\text{g})}{Pm(\text{Be estable})(\text{g})} \cdot \frac{1}{V(\text{m}^3)} \quad (3.6)$$

donde  $T_{1/2}$  ( $^{10}\text{Be}$ ) es la semivida del  $^{10}\text{Be}$ ,  $1.51 \cdot 10^6$  años; Ratio ( $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ ) es el cociente isotópico entre los átomos de  $^{10}\text{Be}$  y los de berilio estable,  $^9\text{Be}$ , resultado proporcionado por el (CNA, 2009),  $R_q$  es el rendimiento químico de la extracción de  $^{10}\text{Be}$ ,  $N_A$  el número de Avogadro;  $m$  (Be estable) es la masa de Be estable adicionada como portador;  $P_m$  (Be estable) es el peso molecular del Be estable; y  $V$  el volumen muestreado en  $\text{m}^3$ . El rendimiento químico de la separación radioquímica de berilio para su medida por AMS se determinó mediante la medida por espectrometría  $\gamma$  del  $^7\text{Be}$  existente en cada muestra tras dicho proceso, previamente a su medida por AMS. El valor medio del rendimiento químico obtenido es  $(83 \pm 6(\text{S.D.})) \%$ , en el rango  $(72 - 91) \%$ . El valor medio de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en la atmósfera de Cáceres es de  $(4.2 \pm 2.2 (\text{S.D.})) \cdot 10^{-7} \text{ Bq/m}^3$ , con un rango de variación de  $(1.6 - 7.7) \cdot 10^{-7} \text{ Bq/m}^3$ . Dadas las dificultades de la medida de  $^{10}\text{Be}$ , tan sólo se ha encontrado una referencia de su concentración en aerosoles, observándose un rango de variación de  $(5 - 17) \cdot 10^4$  átomos/ $\text{m}^3$  en tres estaciones meteorológicas de alta montaña en Austria (Priller et al., 2004). Este rango de variación equivale a  $(0.73 - 2.5) \cdot 10^{-9} \text{ Bq/m}^3$ , siendo estos valores menores que los detectados en Cáceres, situada a una altitud aproximada de 440 m sobre el nivel del mar. Para dilucidar el significado de esta discrepancia, sería necesario realizar más estudios sobre este radionucleido en diferentes localizaciones y altitudes, ya que el número de estudios actualmente existente es demasiado limitado.

Código	F. Cero	V (m <sup>3</sup> )	Rq (%)	<sup>10</sup> Be/ <sup>9</sup> Be (x 10 <sup>-11</sup> )	<sup>10</sup> Be (Bq/m <sup>3</sup> )
HFNOV04	16/11/04	30111	77±5	3.30±0.09	(2.05±0.15)·10 <sup>-7</sup>
HFDIC04	14/12/04	41219	89±6	2.99±0.08	(1.57±0.12)·10 <sup>-7</sup>
HFENE05	14/01/05	29960	83±6	2.59±0.08	(1.75±0.14)·10 <sup>-7</sup>
HFEB05	15/03/05	29998	75±5	4.47±0.12	(2.72±0.20)·10 <sup>-7</sup>
HFMAR05	18/03/05	30092	80±5	5.51±0.16	(3.57±0.25)·10 <sup>-7</sup>
HFABR05	19/04/05	30217	72±5	7.21±0.20	(4.2±0.3)·10 <sup>-7</sup>
HFMAY05	17/04/05	30069	88±6	8.49±0.23	(6.1±0.4)·10 <sup>-7</sup>
HFJUN05	14/06/05	29981	91±6	10.22±0.29	(7.6±0.5)·10 <sup>-7</sup>
HFJUL05A	08/07/05	29953	84±5	5.91±0.16	(4.0±0.3)·10 <sup>-7</sup>
HFJUL05B	26/07/05	29993	79±5	9.57±0.26	(6.1±0.4)·10 <sup>-7</sup>
HFAGO05	16/08/05	29967	87±6	9.51±0.27	(6.7±0.5)·10 <sup>-7</sup>
HFENE07	16/01/07	29957	85±6	2.88±0.08	(1.99±0.15)·10 <sup>-7</sup>
HFEB07	14/02/07	29979	80±5	4.10±0.12	(2.66±0.18)·10 <sup>-7</sup>
HFMAR07	16/03/07	29954	91±6	10.48±0.29	(7.8±0.6)·10 <sup>-7</sup>

**Tabla 3.3. Código de muestra, fecha cero de recolección, volumen muestreado, expresado en m<sup>3</sup>, rendimiento químico, Rq, en % de la separación radioquímica de Be, Ratio (<sup>10</sup>Be/<sup>9</sup>Be) medido por AMS, y nivel de actividad de <sup>10</sup>Be, expresado en Bq/m<sup>3</sup>.**

La presencia de <sup>10</sup>Be y <sup>7</sup>Be tienen el mismo origen, la interacción de rayos cósmicos con átomos de oxígeno, nitrógeno y carbono presentes en la atmósfera. Por lo tanto, las concentraciones de ambos deben de estar correlacionadas. En la figura 3.14 se muestra la correlación entre dichas concentraciones, siendo el resultado de la misma la que se muestra en la ecuación 3.8.



**Figura 3.14. Correlación entre las concentraciones mensuales de  ${}^{10}\text{Be}$  y  ${}^7\text{Be}$ , ambas expresadas en Bq/m<sup>3</sup>.**

$${}^{10}\text{Be}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (1.5 \pm 0.3) \cdot 10^{-4} \cdot {}^7\text{Be}(\text{Bq}/\text{m}^3) - (2.0 \pm 1.4) \cdot 10^{-7}; r = 0.807 \quad (3.7)$$

Por último, dado el limitado número de muestras disponibles, no es posible realizar un periodograma que cuantifique la evolución temporal de la concentración de  ${}^{10}\text{Be}$ . Sin embargo, se observa que la misma, en los meses de primavera y verano, es ligeramente superior a la existente en los meses de otoño e invierno. Esta tendencia se demuestra con la existencia de correlaciones significativas entre la concentración de  ${}^{10}\text{Be}$  y las variables meteorológicas que se presentan a continuación:

$${}^{10}\text{Be}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (2.3 \pm 0.9) \cdot 10^{-10} \cdot R(\cdot 10^4 \text{ J}/\text{m}^2) + (0.3 \pm 2.0) \cdot 10^{-8}; r = 0.868 \quad (3.8)$$

$${}^{10}\text{Be}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (2.0 \pm 0.6) \cdot 10^{-8} \cdot T(^{\circ}\text{C}) + (1.2 \pm 1.0) \cdot 10^{-7}; r = 0.690 \quad (3.9)$$

$${}^{10}\text{Be}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (-3.5 \pm 1.6) \cdot 10^{-8} \cdot P(\text{hPa}) + (3.5 \pm 1.5) \cdot 10^{-5}; r = -0.550 \quad (3.10)$$

De forma que, al igual que ocurrió con la concentración  ${}^7\text{Be}$ , existe una correlación positiva con la radiación solar y la temperatura y negativa con la presión atmosférica, siendo la correlación con la precipitación acumulada no significativa estadísticamente ( $r = -0.27$ ).

### 3.4.3.- $^{22}\text{Na}$ :

El  $^{22}\text{Na}$  se produce en la atmósfera por reacciones de espalación entre los átomos de argón presentes en la atmósfera y los neutrones secundarios. La concentración de  $^{22}\text{Na}$  en la atmósfera de Cáceres es previsible que sea, ver tabla 3.1, del orden de  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ , mucho menor que la de  $^7\text{Be}$ , que es del orden de  $\text{mBq}/\text{m}^3$ , siendo por tanto su frecuencia de detección menor que la de este último, estando de hecho presente con actividades superiores a nuestra capacidad de detección en el 50.3 % de las muestras analizadas. En la figura 3.15 se muestra la evolución temporal de los niveles de actividad neta detectados en los filtros de aerosoles recolectados semanalmente. El valor medio de la concentración de  $^{22}\text{Na}$  para el periodo de septiembre de 2004 a marzo de 2011 es de  $(0.79 \pm 0.35 \text{ (S.D.)}) \cdot 10^{-6} \text{ Bq}/\text{m}^3$ , con un rango de variación de  $(0.14 - 2.3) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ , siendo del mismo orden de magnitud que los niveles reportados por otros autores en diversos países, que informan de la medida de rangos de variación de  $(0.1 - 0.93) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  en Polonia (Długosz et al., 2012; Błażej et al., 2014), y de  $(0.2 - 0.5) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  en Suiza (Steinmann et al., 2013).

Por otra parte, en la figura 3.15 se observa que la evolución temporal de las actividades del  $^{22}\text{Na}$  posee una clara variación estacional, al igual que ocurrió con la concentración de  $^7\text{Be}$ . En los meses de primavera y verano se observa por un lado, un mayor porcentaje de ocurrencia de actividad neta de  $^{22}\text{Na}$ , y por otro, que los valores medios son ligeramente mayores que los que se registran en otoño e invierno (ver tabla 3.5). Esta tendencia temporal también ha sido detectada por otros investigadores (Błażej et al., 2014). La periodicidad anual de la concentración de  $^{22}\text{Na}$  se confirma mediante el correspondiente periodograma de la figura 3.16, en donde se observa una única frecuencia más intensa, de  $1,59 \cdot 10^{-11}$ , correspondiente a un periodo de 52 semanas.

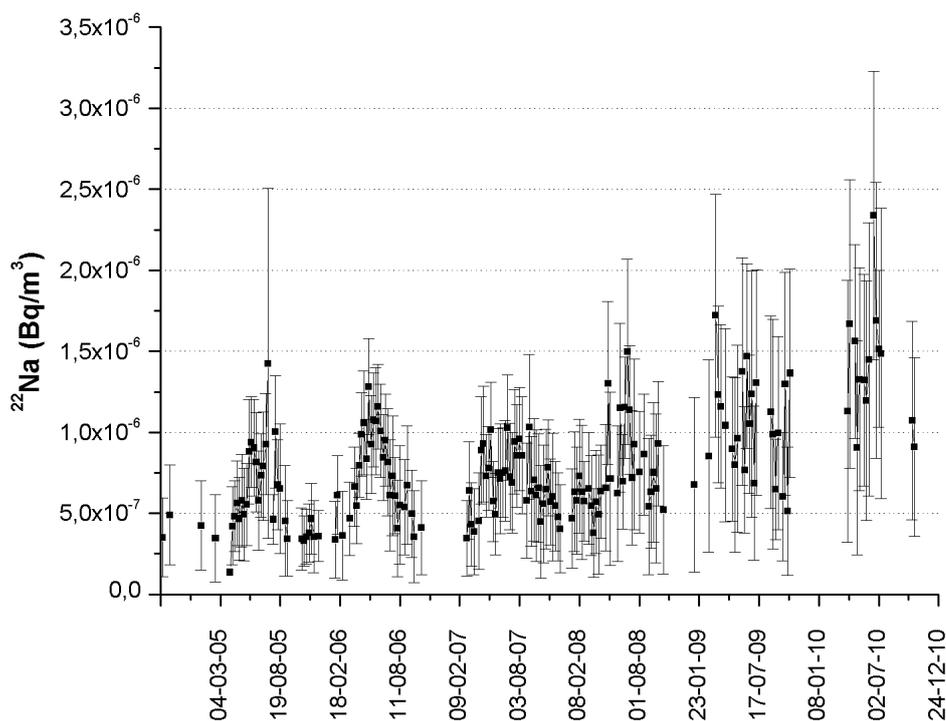
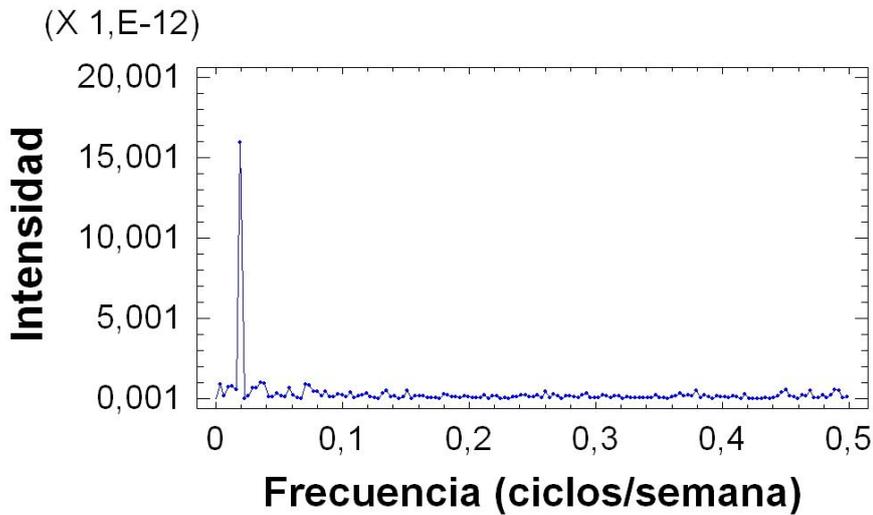


Figura 3.15. Evolución temporal de los niveles de actividad de  $^{22}\text{Na}$ , expresados en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , durante el periodo Septiembre de 2004 a Marzo de 2011.

	Primavera	Verano	Otoño	Invierno
N	64	56	28	22
$^{22}\text{Na}$ ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ )	$(0.90 \pm 0.37) \cdot 10^{-6}$	$(0.82 \pm 0.31) \cdot 10^{-6}$	$(0.60 \pm 0.28) \cdot 10^{-6}$	$(0.62 \pm 0.32) \cdot 10^{-6}$
Rango ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ )	$(0.14 - 2.3) \cdot 10^{-6}$	$(0.34 - 1.6) \cdot 10^{-6}$	$(0.33 - 1.4) \cdot 10^{-6}$	$(0.34 - 1.7) \cdot 10^{-7}$

Tabla 3.5. Valor medio, desviación estándar y rango de valores de la concentración de  $^{22}\text{Na}$ , expresada en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , en las diferentes estaciones del año. N es el número de filtros en los que se ha detectado actividad neta.



**Figura 3.16. Periodograma correspondiente a la serie temporal de las concentraciones de  $^{22}\text{Na}$  durante los años 2005 a 2010.**

Esta periodicidad anual de la concentración de  $^{22}\text{Na}$  tiene también reflejo en la correlación de sus valores promedios mensuales, con los valores promedios mensuales de las variables meteorológicas sistemáticamente consideradas: radiación solar, temperatura y presión. Sin embargo, no se ha detectado correlación lineal significativa entre la concentración de  $^{22}\text{Na}$  y la pluviometría acumulada mensualmente,  $r = -0.09$ .

$$^{22}\text{Na}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (1.7 \pm 0.6) \cdot 10^{-10} \cdot R(\cdot 10^4 \text{ J}/\text{m}^2) + (3.7 \pm 1.7) \cdot 10^{-7} ; r = 0.365 \quad (3.11)$$

$$^{22}\text{Na}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (1.6 \pm 0.7) \cdot 10^{-8} \cdot T(^{\circ}\text{C}) + (4.2 \pm 1.2) \cdot 10^{-7} ; r = 0.291 \quad (3.12)$$

$$^{22}\text{Na}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (-6.8 \pm 1.3) \cdot 10^{-8} \cdot P(\text{hPa}) + (6.7 \pm 1.2) \cdot 10^{-4} ; r = -0.572 \quad (3.13)$$

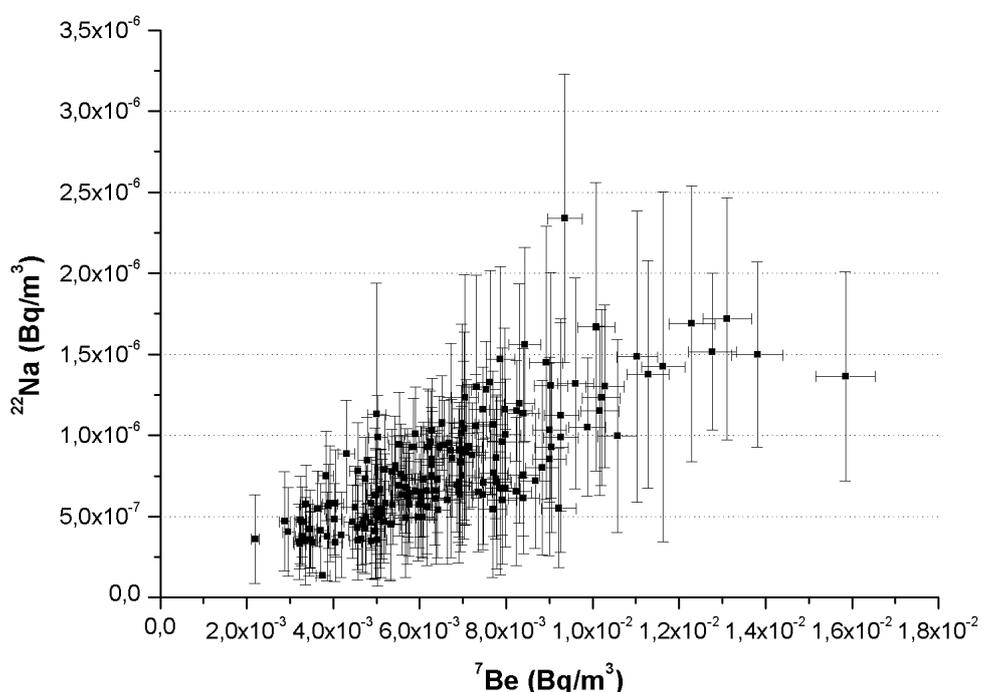
Como se puede observar a partir de los respectivos coeficientes de correlación, existe una cierta correlación lineal positiva entre la concentración de  $^{22}\text{Na}$  y la radiación solar y la temperatura promedio, pero éstas no son estadísticamente significativas. También se observa una correlación lineal negativa con la presión, teniendo todas ellas la misma explicación que ya se ha dado previamente para el comportamiento del  $^7\text{Be}$ .

Por ello, no es de extrañar que la concentración de  $^{22}\text{Na}$  esté correlacionada con la de  $^7\text{Be}$ , ya que ambos radionucleidos son cosmogénicos, y por tanto, el término fuente es el mismo, la interacción de la radiación cósmica, generada mayoritariamente por el Sol, con los átomos presentes en la atmósfera. La figura 3.7

muestra la correlación existente entre las concentraciones de ambos radionucleidos en las muestras de filtros recolectados semanalmente, obteniendo la siguiente correlación lineal entre ambos conjuntos de actividades:

$$^{22}\text{Na}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (1.16 \pm 0.08) \cdot 10^{-4} \cdot ^7\text{Be}(\text{Bq}/\text{m}^3) + (3 \pm 5) \cdot 10^{-8} ; r = 0.767 \quad (3.14)$$

De forma que el ratio de actividades  $^{22}\text{Na}/^7\text{Be}$  es  $(1.16 \pm 0.08) \cdot 10^{-4}$  en la atmósfera de Cáceres. Este cociente está dentro del rango  $(0.47 - 1.25) \cdot 10^{-4}$  detectado en otros países como Japón y Polonia (Tokuyama et al., 1998; Błazej et al., 2014).



**Figura 3.17. Relación de los niveles de actividad de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$ , ambos expresados en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , durante el periodo, Septiembre de 2004 a Marzo de 2011.**

### 3.5.- Modelización y Predicción:

Una vez analizadas las estructuras temporales de las actividades para estos radionucleidos, así como sus correlaciones con las diferentes variables meteorológicas, en el presente apartado se han ajustado dichas evoluciones mediante modelos de regresión múltiple, dependientes de algunas de estas variables

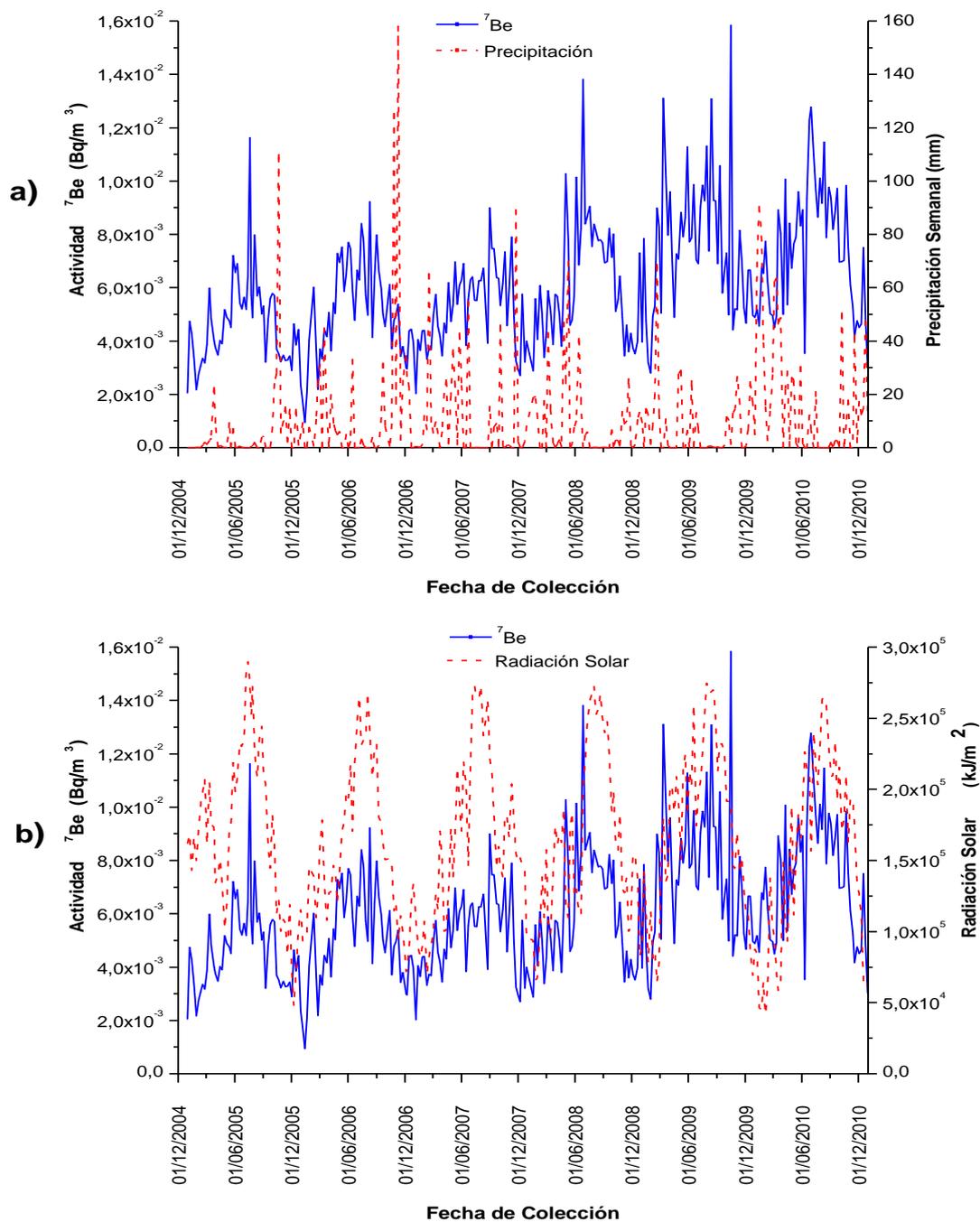
meteorológicas. El fin último por el que emplear este tipo de modelos, es el de intentar identificar y cuantificar los principales mecanismos de incorporación y eliminación en la atmósfera, para incluso las extremadamente bajas actividades con las que se detectan algunos de estos radionucleidos, pudiendo de esta forma predecir el comportamiento que éstos tendrían en la atmósfera, en situaciones medioambientales similares, pero con mayores actividades.

Para ello, se han utilizado los filtros recolectados, con frecuencia semanal, en la atmósfera de Cáceres (España) durante el periodo comprendido entre el 31-12-2004 y el 31-12-10.

### **3.5.1.- Modelización de la evolución temporal del $^7\text{Be}$ y $^{22}\text{Na}$ :**

Las principales componentes implicadas en la evolución temporal de los niveles de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$  en los aerosoles son: la radiación solar y la pluviometría, como ya se mostrara en las correlaciones obtenidas anteriormente. En las figuras 3.18.a y 3.19.a se presenta la precipitación acumulada semanalmente, acompañado de los niveles de actividad de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$  respectivamente, durante el periodo objeto de estudio. Se puede apreciar como la precipitación en Cáceres se produce fundamentalmente en las estaciones de primavera y otoño (clima típico mediterráneo), estaciones en las que los niveles de actividad de dichos radionucleidos cosmogénicos son menores, como consecuencia del efecto de limpieza que dicha precipitación ejerce sobre la atmósfera.

Por otro lado, los máximos niveles de actividad de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$  se detectan durante los meses más cálidos (figuras 3.18.b y 3.19.b); hecho que puede justificarse por una mezcla vertical de las capas de aire, descendiendo el aire frío desde las capas más altas de la atmósfera, que contienen mayores concentraciones de radionucleidos cosmogénicos, incrementadas éstas en dicha estación por el mayor número de horas y el mayor ángulo de incidencia de la radiación solar durante el verano.



**Figura 3.18. Comparación entre a) la precipitación acumulada semanalmente (en mm) y los niveles de actividad de  ${}^7\text{Be}$  y, b) la radiación solar total semanal ( $\text{kJ/m}^2$ ) y los niveles de actividad de  ${}^7\text{Be}$ , en la atmósfera de Cáceres a nivel superficial.**

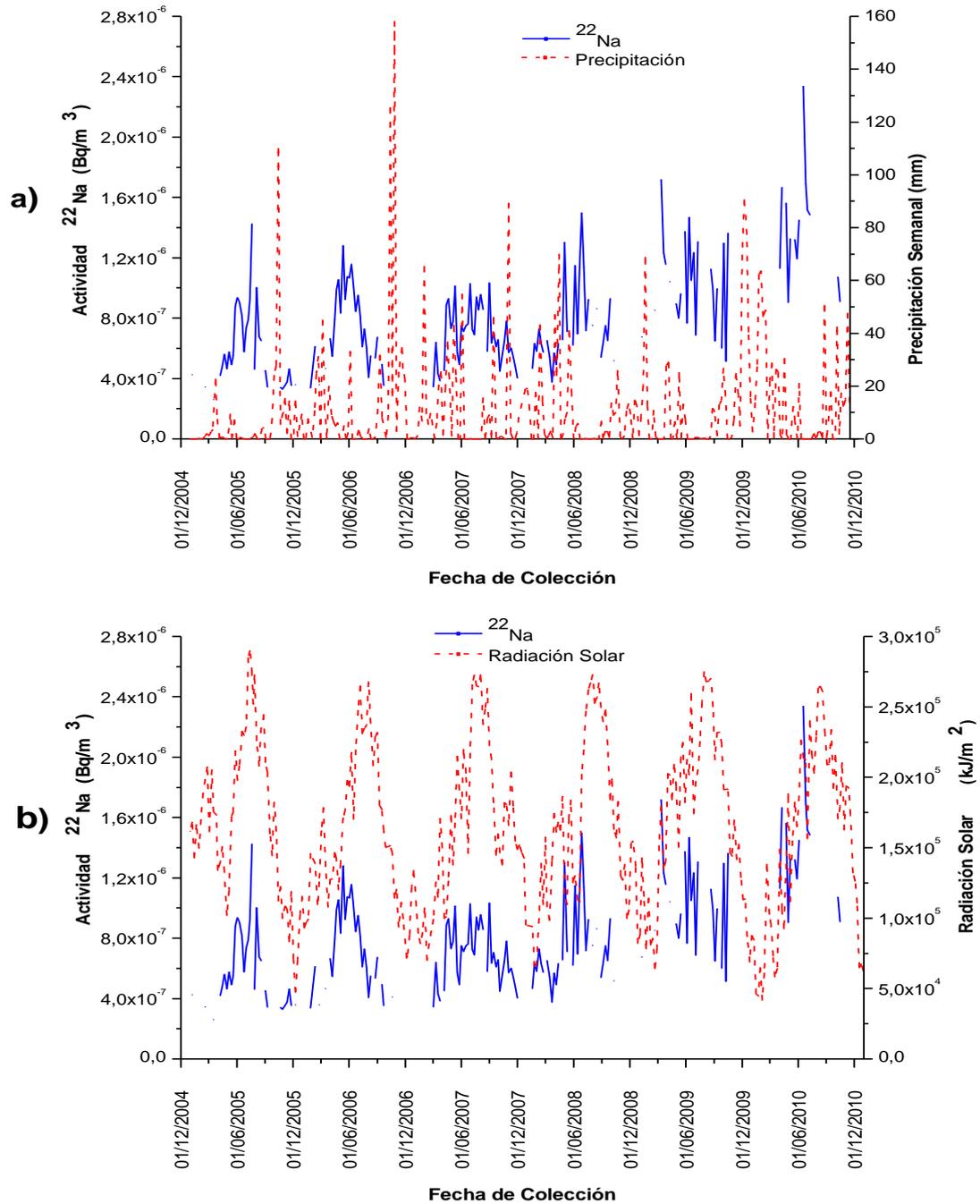


Figura 3.19. Comparación entre a) la precipitación acumulada semanalmente (en mm) y los niveles de actividad de  $^{22}\text{Na}$  y, b) la radiación solar total semanal ( $\text{kJ/m}^2$ ) y los niveles de actividad de  $^{22}\text{Na}$ , en la atmósfera de Cáceres a nivel superficial.

Por ello, teniendo en cuenta que la evolución de los niveles de actividad de estos radionucleidos presenta una periodicidad básicamente anual, y conociendo las variables meteorológicas que determinan su presencia en la atmósfera de Cáceres, se ha tratado de cuantificar la influencia de las principales componentes que rigen la dinámica de estos radionucleidos en dicha atmósfera, desarrollando para ello un modelo de regresión lineal múltiple que permita reproducir los resultados experimentales obtenidos.

En este sentido, aunque existen en la bibliografía trabajos que utilizan estos modelos de regresión lineal múltiple con otras variables meteorológicas, como son la temperatura del aire, humedad relativa y precipitación (Piñeiro et al., 2012); se ha decidido utilizar el modelo desarrollado tiempo atrás en el LARUEX (Baeza et al., 1996), ya que con este último se consiguió explicar un mayor porcentaje de la varianza de los datos (90,7 %), frente a un 72,2 % con el modelo de Piñeiro, para la evolución temporal del  $^7\text{Be}$ .

Así, en la siguiente ecuación se detalla el modelo utilizado para explicar la evolución temporal de los niveles de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$  en la atmósfera de Cáceres aquí registrada:

$$\frac{A(t+\Delta t) - A(t)}{\Delta t} = k_1 R(t) + k_2 P(t) + k_3 A(t); \quad (15)$$

Donde:

- $A(t)$ : es la actividad de  $^7\text{Be}$  ó  $^{22}\text{Na}$  para la fecha, identificada como  $t$
- $A(t+\Delta t)$ : es la actividad de  $^7\text{Be}$  ó  $^{22}\text{Na}$  a un incremento de tiempo de una semana
- $k_1, k_2$  y  $k_3$ : son los coeficientes del ajuste
- $R(t)$ : es la radiación solar para la fecha, identificada como  $t$
- $P(t)$ : pluviometría para la fecha, identificada como  $t$

Para realizar el ajuste con el modelo de regresión lineal múltiple, en el presente estudio, se han utilizado los datos semanales de precipitación y radiación solar cedidos por la Agencia Estatal de Meteorología (AEMET, 2014).

Por tanto, se ha realizado el análisis de regresión lineal múltiple representando los valores de  $A(t+\Delta t) - A(t)$  con respecto a las variables  $R(t)$ ,  $P(t) \cdot A(t)$  y  $A(t)$ . De este análisis obtuvieron los valores de las constantes  $k_1$ ,  $k_2$  y  $k_3$ , es decir, las

componentes de incorporación y eliminación del  $^7\text{Be}$  debido a la radiación solar, a la pluviometría y, al decaimiento radiactivo y a la deposición seca ( $k_3$ ), respectivamente.

En la tabla 3.6 se exponen los resultados de los coeficientes para el ajuste de la regresión lineal múltiple de la ecuación 3.15, usada para los niveles de actividad de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$  en la atmósfera de Cáceres.

	$^7\text{Be}$		$^{22}\text{Na}$	
	Coefficiente $\pm$ error	Nivel de significación	Coefficiente $\pm$ error	Nivel de significación
$k_1$	$(1,57 \pm 0,18) \cdot 10^{-8}$	0	$(1,75 \pm 0,29) \cdot 10^{-12}$	0
$k_2$	$(3,43 \pm 0,99) \cdot 10^{-3}$	$6,12 \cdot 10^{-4}$	$(4,04 \pm 2,00) \cdot 10^{-3}$	$4,61 \cdot 10^{-2}$
$1-k_3$	$(5,19 \pm 0,51) \cdot 10^{-1}$	0	$(5,68 \pm 0,66) \cdot 10^{-1}$	0
<b>R<sup>2</sup>:0,914</b>			<b>R<sup>2</sup>:0,913</b>	

**Tabla 3.6. Coeficientes y estadísticos de la regresión lineal múltiple (ecuación 3.15) para los niveles de actividad de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$ , en la atmósfera de Cáceres.**

Se puede concluir a la vista de los resultados que tanto para el ajuste del  $^7\text{Be}$  como para el del  $^{22}\text{Na}$ , los coeficientes de los tres términos son estadísticamente significativos con un nivel de confianza, en el peor de los casos ( $k_2$ : efecto de limpieza de la lluvia), superiores al 99 y 95 %, respectivamente.

Así, el coeficiente  $k_1$  que mide la producción y la incorporación de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$  en el aire superficial debido a los movimientos verticales de aire por el calentamiento de la tierra, es de  $(1,57 \pm 0,18) \cdot 10^{-8}$  Bq/m<sup>3</sup> y  $(1,75 \pm 0,29) \cdot 10^{-12}$  Bq/m<sup>3</sup> por cada kJ/m<sup>2</sup> de radiación solar total semanal, respectivamente; siendo éste  $10^4$  veces mayor para el  $^7\text{Be}$  que para el  $^{22}\text{Na}$ , como ya se pusiera de manifiesto con anterioridad al comparar sus respectivos niveles de actividad. Por otro lado, el coeficiente  $k_2$  indica que el efecto de limpieza que ejerce la lluvia es de  $(3,43 \pm 0,99) \cdot 10^{-3}$  Bq/m<sup>3</sup> y  $(4,04 \pm 2,00) \cdot 10^{-3}$  Bq/m<sup>3</sup> por cada mm de precipitación y, por cada Bq/m<sup>3</sup> de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$  presente en la atmósfera, respectivamente. Además, debe hacerse notar que los coeficientes  $k_2$  y  $k_3$  son prácticamente idénticos para ambos radionucleidos, lo cual indica que cada uno de los dos mecanismos de eliminación poseen distinta eficiencia,

pero que cada uno de ellos es igualmente eficiente para ambos radionucleidos, es decir, precipitan con la lluvia con una eficiencia muy similar y, se depositan por gravedad también con similar eficiencia. Por todo ello, se puede deducir que ambos radionucleidos se asocian en promedio al mismo tamaño de aerosol.

Por último, a partir del valor obtenido para el coeficiente  $k_3$  se ha calculado el tiempo de residencia para  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$  en la atmósfera debido única y exclusivamente a la deposición seca y al decaimiento radiactivo mediante la ecuación 3.16:

$$k_3 = \frac{\ln 2}{T} \times 7 ; \quad \text{E. 16}$$

Donde:

- $k_3$ : coeficiente del modelo
- 7: 7 días (1 semana)
- T: Tiempo de residencia (en días)

Mediante la ecuación 3.16 se obtiene que el tiempo de residencia para el  $^7\text{Be}$  en la atmósfera de Cáceres es de  $10,1 \pm 1,0$  días. Asimismo, el tiempo de residencia calculado para el  $^{22}\text{Na}$  en la atmósfera de Cáceres es de  $11,2 \pm 1,3$  días. Como cabría esperar, estos últimos tiempos de residencia son del orden de los del  $^7\text{Be}$ ; hecho que se puede ser justificado por su origen común y, también por similar vía de eliminación.

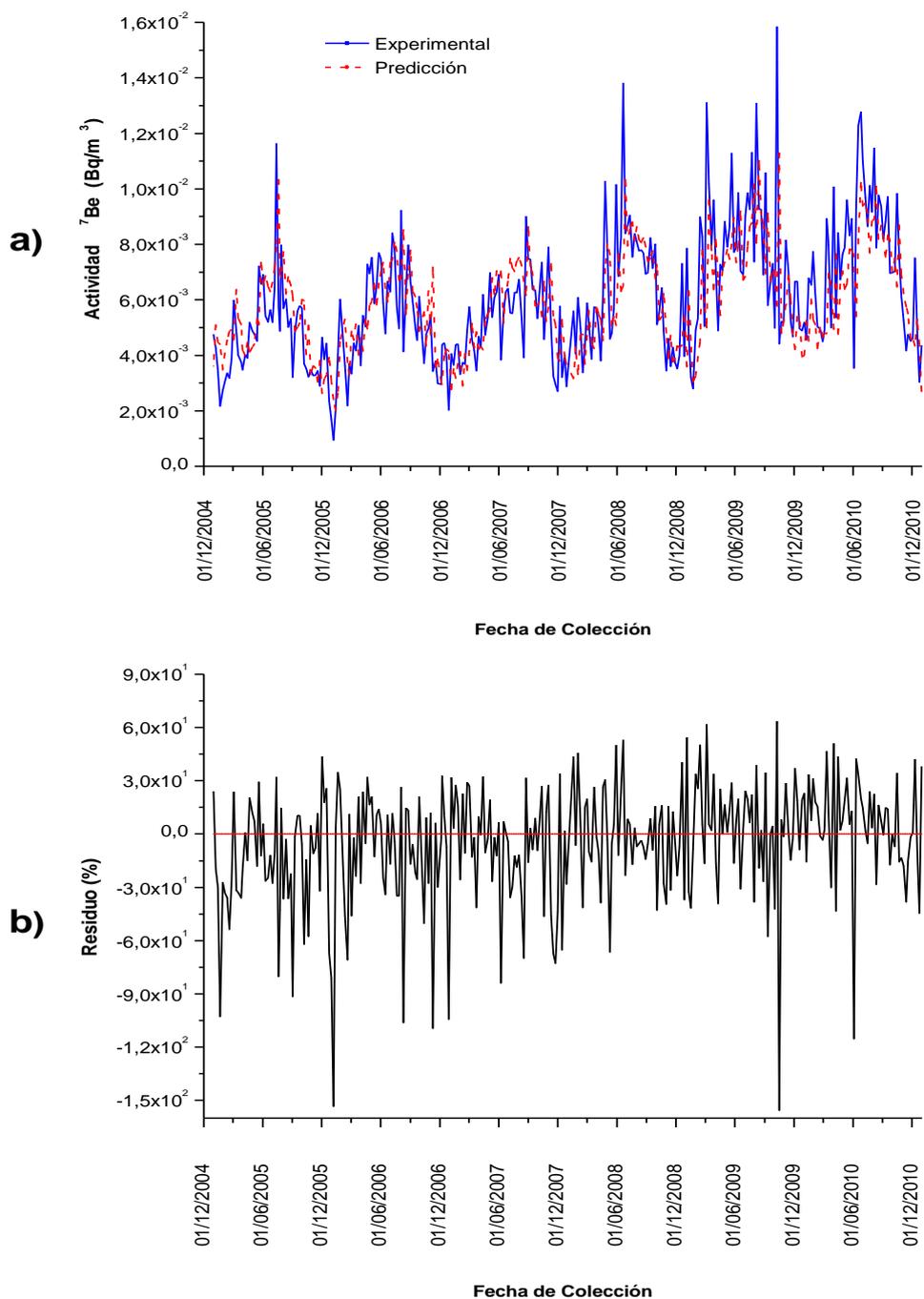
En este sentido, aún cuando el tiempo de residencia varía de una localización a otra, dependiendo de los mecanismos de eliminación de los aerosoles, del tamaño de los mismos y de las condiciones meteorológicas, debe señalarse que los precitados resultados coinciden significativamente con los aportados por otros autores. A modo de ejemplo, (Papastefanou et al., 1995) en su estudio del  $^7\text{Be}$  asociado a los aerosoles, llegan a la conclusión de que el tiempo de residencia medio de los aerosoles con un diámetro aerodinámico medio de actividad de  $90 \mu\text{m}$  está entre 7,4 y 8,9 días.

Por último, en las figuras 3.20.a y 3.21.a, se muestran los niveles de actividad experimentales de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$ , respectivamente, y los que se predicen haciendo uso de la ecuación 3.15, utilizando para ello los coeficientes  $k_1$ ,  $k_2$  y  $k_3$  obtenidos para  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$  con dichos niveles de actividad experimentales. A partir de estas gráficas, se puede observar que existe un elevado grado de concordancia entre los niveles de actividad experimentales y los predichos para ambos radionucleidos.

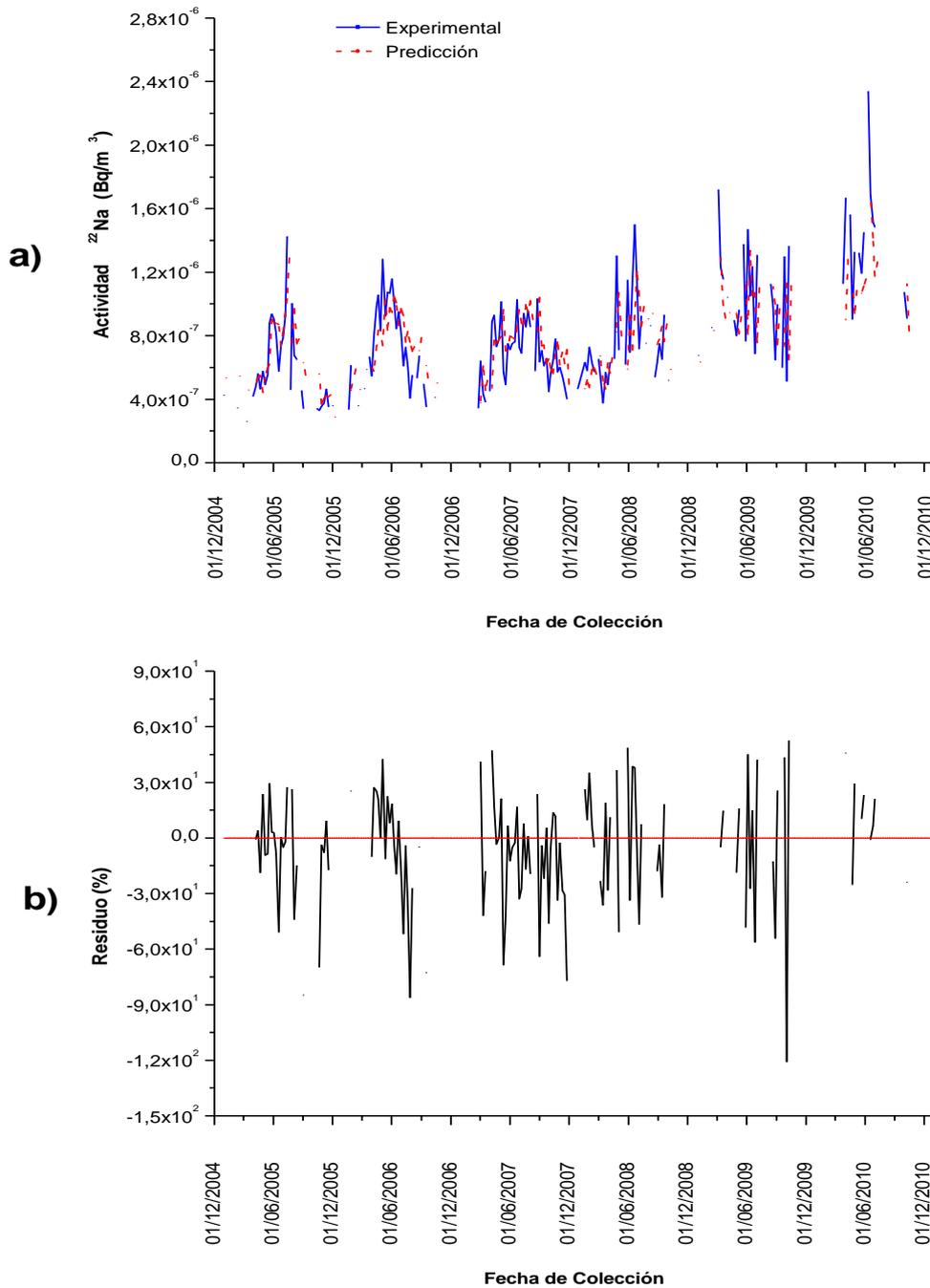
Asimismo, en las figuras 3.20.b y 3.21.b, se representa la evolución con el tiempo del error relativo de los residuos  $\left( \frac{A_{experimental} - A_{modelo}}{A_{experimental}} \right) \cdot 100$  para ambos

radionucleidos. En ambos casos, se observa que la evolución de estos residuos tiene una distribución aleatoria, en torno al valor cero, con una dispersión prácticamente constante a lo largo del tiempo. Por otra parte, a partir del análisis de sus correspondientes periodogramas, se observa que no presentan una estructura temporal definida; con lo cual no debe existir ningún otro fenómeno que produzca un incremento o descenso en las actividades de los citados radionucleidos no considerados en el modelo utilizado. Sin embargo, existen una serie de valores para enero de 2006, octubre de 2009 y junio de 2010, en los que los residuos relativos aumentan considerablemente y, que no se pueden justificar a partir de las variables mencionadas, pero que probablemente se deben a un menor intercambio de aire entre la estratosfera y la troposfera, con la consecuente disminución de aire estratosférico en la esta última y, por tanto, unas menores concentraciones de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$ .

No obstante, los resultados obtenidos ponen de manifiesto la idoneidad de este modelo para reproducir el comportamiento que tendría la aparición de ambos radionucleidos en un ecosistema de características como el aquí estudiado.



**Figura 3.20. a) Comparación entre la evolución temporal de: a) los niveles de actividad en la atmósfera de Cáceres a nivel superficial del  ${}^7\text{Be}$  y los predichos por el modelo, b) los valores de los residuos entre ambos conjuntos de actividades, expresados en diferencias porcentuales.**



**Figura 3.21. a) Comparación entre la evolución temporal de: a) los niveles de actividad en la atmósfera de Cáceres a nivel superficial del  $^{22}\text{Na}$  y los predichos por el modelo, b) valores de los residuos entre ambos conjuntos de actividades, expresados en diferencias porcentuales.**

### **3.5.2.- Capacidad predictiva del comportamiento normal del contenido de $^7\text{Be}$ y $^{22}\text{Na}$ en la atmósfera de Cáceres:**

Partiendo de la base que la periodicidad que muestran las evoluciones temporales de los niveles de actividad de ambos radionucleidos en los aerosoles de la atmósfera de Cáceres es anual, mediante el programa SPSS, y haciendo uso del análisis de series temporales del mismo, se ha buscado el modelo óptimo para ajustar dichos datos a partir del cual realizar la predicción futura de los niveles de actividad de los mismos.

Inicialmente se definieron las fechas y la periodicidad de los datos que se han usado para el ajuste del modelo, tomando las fechas como semanas y, la periodicidad de 52 semanas. A través de dicho programa, se realiza una búsqueda del modelo que mejor se ajusta a la serie de datos. Al realizar el análisis, se obtiene que el modelo que mejor se ajusta a los datos sea el Modelo Estacional Simple (modelo adecuado para las series con una tendencia y un efecto estacional que es constante a lo largo del tiempo).

Por ello, se ha realizado el ajuste a un modelo estacional simple, utilizando para el periodo de ajuste los datos de un año (2005), dos años (2005 a 2006), tres años (2005 a 2007), cuatro años (2005 a 2008) y cinco años (2005 a 2009) y, prediciendo en todos los casos desde el último año usado para el periodo de ajuste hasta diciembre del año 2010. En la tabla 3.7 se muestran los datos de bondad del ajuste realizado para los periodos mencionados y para el  $^7\text{Be}$  y, el error relativo promedio para el periodo de predicción.

donde:

- $R^2$ : es una estimación de la proporción de la variación total de la serie que es explicada por el modelo.
- $RMSE$ : es la raíz cuadrada del promedio de los errores al cuadrado. Se trata de una medida de cuánto se desvía la serie dependiente del nivel pronosticado por el modelo, expresado en las mismas unidades que la serie dependiente.
- $MAPE$ : error absoluto porcentual medio. Da una medida de cuánto se desvía la serie dependiente del nivel pronosticado por el modelo. Es independiente de las unidades.
- $MAE$ : error absoluto promedio. Mide cuánto se desvía la serie del nivel pronosticado por el modelo.

Periodo de Ajuste	R <sup>2</sup>	RMSE	MAPE	MAE	Error relativo promedio (%) (periodo de predicción)
2005	1	$4,62 \cdot 10^{-13}$	$1,63 \cdot 10^{-09}$	$6,28 \cdot 10^{-14}$	29
2005 a 2006	0,83	$1,00 \cdot 10^{-03}$	14,83	$1,00 \cdot 10^{-03}$	28
2005 a 2007	0,78	$1,00 \cdot 10^{-03}$	17,23	$1,00 \cdot 10^{-03}$	27
2005 a 2008	0,70	$1,00 \cdot 10^{-03}$	18,08	$1,00 \cdot 10^{-03}$	25
2005 a 2009	0,70	$1,00 \cdot 10^{-03}$	20,13	$1,00 \cdot 10^{-03}$	22

**Tabla 3.7. Datos de la bondad del ajuste del modelo estacional simple obtenido para el <sup>7</sup>Be y diferentes años para el periodo de ajuste y, el error relativo promedio para el periodo de predicción.**

De estos ajustes, se puede concluir que a medida que aumenta el número de datos usados para el periodo de ajuste, el valor del R<sup>2</sup> va siendo menor, como consecuencia del aumento del número de variables que influyen en el ajuste. Como contrapartida, a medida que el número de datos utilizados en el ajuste al modelo va siendo mayor, el error que se comete en la estimación de los niveles de actividad futuros, en el período de predicción, va siendo menor hasta un periodo de predicción de tres años; a partir del cual aumenta de nuevo. Así, al buscar un compromiso de un mayor valor de R<sup>2</sup> y un menor error en el periodo de predicción, se concluye que el modelo óptimo es aquel que utiliza tres años de datos para el periodo de ajuste.

En la tabla 3.8, se presentan las medidas de la bondad para los años 2005 a 2007 para el periodo de ajuste y, el error relativo promedio para el periodo de predicción (2008 a 2010) para el <sup>22</sup>Na.

	<b>R<sup>2</sup></b>	<b>RMSE</b>	<b>MAPE</b>	<b>MAE</b>	<b>Error relativo promedio (%) (periodo de predicción)</b>
<b><sup>22</sup>Na</b>	0,774	$1,60 \cdot 10^{-7}$	37	$1,20 \cdot 10^{-7}$	39

**Tabla 3.8. Datos de la bondad del ajuste del modelo estacional simple obtenido para el <sup>22</sup>Na (periodo de ajuste: 2005 a 2007) y el error relativo promedio para el periodo de predicción (2008 a 2010).**

En la figura 3.22, se muestran los valores observados (experimentales), el ajuste realizado por el modelo, los intervalos de confianza superior e inferior del ajuste con un 95 % de probabilidad y, las predicciones que dicho modelo ejecuta para cada uno de los radionucleidos estudiados. Como se puede observar, existe un elevado grado de similitud entre los datos experimentales obtenidos y el ajuste realizado por el modelo; así como para los valores predichos por el mismo. Sin embargo, se aprecia cómo a medida que el periodo que se predice se aleja del periodo de ajuste, los intervalos de confianza para éste van creciendo, es decir, el error que se comete en la predicción va siendo mayor.

Por tanto, se puede concluir que el modelo óptimo es aquel que utiliza para el periodo de ajuste un intervalo de tres años y, con el fin de cometer el menor error en el las predicciones futuras, un periodo de predicción no superior al año inmediatamente posterior al del periodo de ajuste.

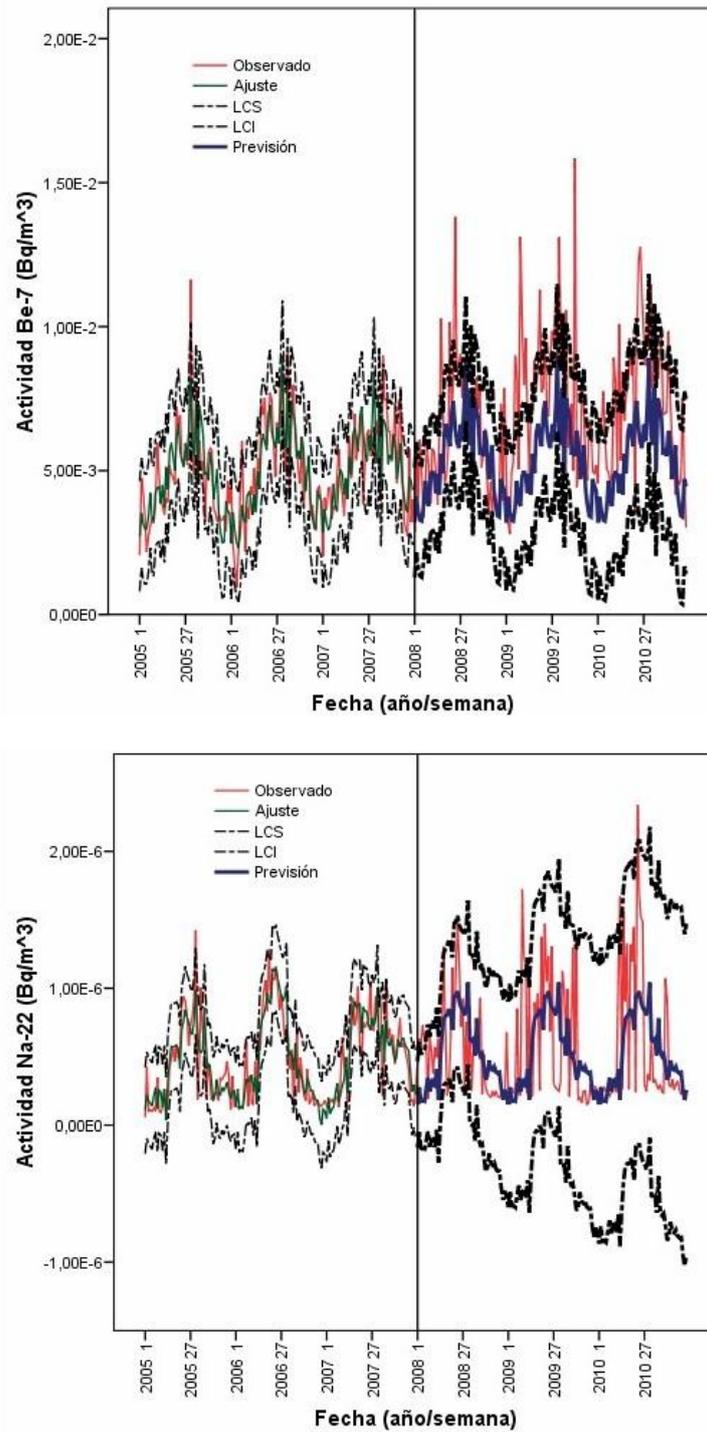


Figura 3.22. Datos observados (experimentales), ajustados por el modelo, predichos y límites superior e inferior del ajuste al 95 % de probabilidad.

### **3.6.- Conclusiones:**

Tras realizar el análisis y la modelización de los radionucleidos de origen cosmogénicos en la atmósfera de Cáceres, procedemos a detallar los principales resultados y conclusiones obtenidos.

1. Los niveles de actividad medios detectados por AMS para el  $^{10}\text{Be}$   $(4,2\pm 2,7)\cdot 10^{-7}$  Bq/m<sup>3</sup> son más bajos que para el  $^7\text{Be}$   $((5,8\pm 2,3)\cdot 10^{-3}$  Bq/m<sup>3</sup>) y  $^{22}\text{Na}$   $((0,79\pm 0,36)\cdot 10^{-6}$  Bq/m<sup>3</sup>)
2. La concentración de radionucleidos cosmogénicos, ( $^7\text{Be}$ ,  $^{22}\text{Na}$  y  $^{10}\text{Be}$ ) presentan variaciones estacionales con periodicidad anual, siendo los valores obtenidos en los meses de primavera y verano superiores a los de otoño e invierno.
3. Se observan correlaciones positivas entre dichos radionucleidos cosmogénicos y, del  $^7\text{Be}$  con las variables meteorológicas radiación solar y temperatura media mensual. Para el  $^7\text{Be}$  y el  $^{22}\text{Na}$  se observa una correlación negativa con la presión atmosférica media mensual.
4. Se ha cuantificado la influencia de las principales componentes que rigen la dinámica de estos radionucleidos en la atmósfera de Cáceres, es decir: la radiación solar, la precipitación y el decaimiento radiactivo y la deposición seca, desarrollando para ello un modelo de regresión lineal múltiple. El coeficiente de incorporación y producción para el  $^7\text{Be}$  es 4 órdenes de magnitud superior al del  $^{22}\text{Na}$ , como se pone de manifiesto en los niveles de actividad detectados para ambos. Por otro lado, los coeficientes de eliminación de éstos de la atmósfera de Cáceres, es decir, tanto el efecto de limpieza por la precipitación, como la deposición seca son muy similares para ambos; por lo que ambos radionucleidos deben asociarse a partículas de aerosoles de similar tamaño.
5. A partir del término de deposición seca y del decaimiento radiactivo ( $k_3$ ), se puede conocer el tiempo de residencia del  $^7\text{Be}$  y del  $^{22}\text{Na}$  en la atmósfera debido a estos dos factores, siendo de 10,1 y 11,2 días, respectivamente.
6. A través del análisis de series temporales, se han ajustado las actividades detectadas de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$ , para los años 2005 a 2007, a un modelo estacional simple; y se han predicho satisfactoriamente, para los años 2008 a 2010, las actividades de ambos radionucleidos, con unos errores relativos promedios de 27 y 38 %, respectivamente.

## **Capítulo 4**

# **RADIONUCLEIDOS DE ORIGEN PRIMORDIAL Y ANTROPOGÉNICO PRESENTES EN LOS AEROSOLES DE LA ATMÓSFERA DE CÁCERES**

#### **4.1.- Introducción:**

Los radionucleidos asociados a las partículas de aerosoles pueden representar un peligro para la salud a raíz de los materiales liberados tras un accidente nuclear. Así radionucleidos de vida corta, como los radioyodos, y otros de vida larga como los radiocesios, pueden ser detectados en las proximidades del accidente. Sin embargo, los radionucleidos de origen antropogénico están también presentes en los aerosoles debido tanto a la emisión y transporte de materia particulada, por la quema de biomasa procedente de incendios forestales (Paatero et al., 2009; Strode et al., 2012; Evangeliou et al., 2014), como al transporte de polvo durante las tormentas (Hernández et al., 2014). Como consecuencia de todos estos procesos, la concentración de radionucleidos antropogénicos en la atmósfera es variable.

Los radionucleidos de origen natural también están presentes en los aerosoles, ya que éstos se localizan en las partículas de los suelos, que pueden ser erosionados, resuspendidos y transportados por los procesos descritos con anterioridad; así como por la exhalación del radón desde el suelo, especialmente el  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{210}\text{Po}$ . . Otras fuentes con intervención humana del  $^{210}\text{Pb}$  son la quema de carbón, el uso de fertilizantes fosfatados, los gases producidos por los tubos de escape de los coches, etc. (Lozano et al., 2013).

Por ello, es de gran importancia conocer las evoluciones temporales de los radionucleidos de origen natural y artificial; estableciendo así el nivel de fondo del emplazamiento y, poder evaluar el impacto radiológico o las exposiciones que experimentan los miembros del público, si se produce cualquiera de estos eventos (incendio, polvo en resuspensión, accidente nuclear, etc.).

La recolección y preparación de las muestras, así como su medida por espectrometría gamma para la determinación de las concentraciones de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{137}\text{Cs}$ , ya se ha descrito en el capítulo anterior.

#### **4.2.- Preparación de las muestras:**

##### **4.2.1.- Separación radioquímica de emisores $\alpha$ :**

La determinación de radionucleidos emisores  $\alpha$  ( $^{234,235,238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228,230,232}\text{Th}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  y  $^{241}\text{Am}$ ) se realizó en muestras seleccionadas mediante los correspondientes procedimientos de separación radioquímica utilizados en el LARUEX. Dichas muestras son una alícuota de los filtros de alto flujo acumulados mensualmente, de forma que poseen una cantidad equivale a un volumen

aproximado de 10000 m<sup>3</sup>. El primer paso en todas las separaciones radioquímicas fue su digestión ácida con una mezcla de ácidos, compuesta por HNO<sub>3</sub>, HCl, HF (9:3:6 mL), en un horno de microondas (Milestone Ethos Pro Ltd.) a 200°C durante 20 minutos, antes del procedimiento radioquímico correspondiente. Después de la digestión, las muestras se evaporan hasta la obtención del residuo, al que se le añade H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> en medio HCl, para eliminar fluoruros, para después convertir la muestra a medio HNO<sub>3</sub>.

En la alícuota correspondiente a la separación radioquímica de uranio, se adiciona una cantidad conocida de <sup>232</sup>U como trazador. A continuación, el contenido de uranio es coprecipitado con Fe(OH)<sub>3</sub>. El precipitado se volvió a disolver en HCl 9M, seguido de su separación en una columna con resina Dowex 1x4, de forma que el uranio se retiene en la columna, y posteriormente se eluye con HNO<sub>3</sub> 8M. Finalmente, las fuentes alfa fueron preparadas por co-precipitación con NdF<sub>3</sub> (Sill, 1987).

Para determinar el contenido de radio se siguió el siguiente proceso: se añadió <sup>133</sup>Ba como trazador; el precipitado de MnO<sub>2</sub> absorbe el radio presente en el agua; el radio fue coprecipitado en forma de Ba(Ra)SO<sub>4</sub> (Baeza et al., 1998); una vez obtenido el precipitado, éste es disuelto en HNO<sub>3</sub> 5M; el uranio y el torio presente en las muestras se extrajeron con TBP (tributilfosfato); el coprecipitado recuperado se determinó mediante espectrometría  $\gamma$  del <sup>133</sup>Ba (302,85 y 356,01 keV) de las fuentes correspondientes, usando un detector de germanio de tipo N ya descrito en el apartado de espectrometría gamma.

La separación de radioquímica de <sup>239+240</sup>Pu, <sup>228,230,232</sup>Th y <sup>241</sup>Am se realiza mediante un proceso secuencial (La Rosa *et al.*, 1992, Mietelski *et al.*, 1997, Mietelski *et al.*, 2002), aunque para evitar posibles interferencias del trazador de torio, <sup>229</sup>Th, se tomaron alícuotas diferentes para la separación de torio y las de plutonio y americio. En primer lugar se adicionan los trazadores a la muestra de agua, en nuestro caso <sup>242</sup>Pu, <sup>229</sup>Th y <sup>243</sup>Am, y se dejan homogeneizar. A continuación se procede a la preconcentración de la muestra mediante la formación de un precipitado de Fe(OH)<sub>3</sub> sobre el que se adsorben el plutonio, el torio y el americio presentes en la misma. Dicho precipitado se filtra y se disuelve en HNO<sub>3</sub> 8M. Para determinar el contenido total de plutonio es necesario realizar un ajuste de valencias del mismo mediante el uso de hidracina, HNO<sub>3</sub> y NaNO<sub>2</sub>, de forma que todo el plutonio se encuentre finalmente en Pu(IV). La muestra se pasa por una columna cromatográfica con resina Dowex 1x8 en medio HNO<sub>3</sub> 8M, que retiene el plutonio presente en la muestra, junto con el torio y el Np(IV), si existiese; mientras que no lo hace con el uranio y el americio. Esta fracción se

guarda para la posterior separación radioquímica del americio. El torio de la columna se eluye con HCl concentrado. El plutonio se eluye de la columna mediante la acción combinada de HCl diluido e hidroxilamina, y se preparan las respectivas fuentes espectrométricas de torio y plutonio, mediante el método de co-precipitación con  $\text{NdF}_3$  (Sill, 1987).

Por su parte, en la fracción de americio, se realiza una eliminación de interferentes mediante una coprecipitación secuencial con oxalato de calcio y  $\text{Fe}(\text{OH})_3$ . Posteriormente, se purifica la muestra de posibles trazas de Th que queden, pasándola a través de una columna cromatográfica DOWEX 1x8 acondicionada con  $\text{HNO}_3$  8M. En dicha columna el torio se queda retenido, pero no el americio. Finalmente, se pasa la muestra por una columna DOWEX 1x8 en medio nítrico+metanol, quedando retenido el americio y demás tierras raras en la misma. Estas últimas se eluyen mediante una solución de  $\text{HCl}+\text{NH}_4\text{SCN}+$  metanol. El americio se eluye de la columna mediante una solución de metanol+HCl. La fuente espectrométrica alfa se prepara de nuevo mediante el método de co-precipitación con  $\text{NdF}_3$  (Sill, 1987).

Las espectrometrías  $\alpha$  de las muestras de uranio, radio, torio, plutonio y americio se llevaron a cabo usando doce detectores de silicio diferentes, con una eficiencia media de 23,2% y una resolución de 38,7 keV para una distancia fuente-detector de 6 mm.

#### **4.2.2.- Separación radioquímica de $^{90}\text{Sr}$ :**

La determinación del contenido de  $^{90}\text{Sr}$  en muestras de aerosoles se basa en la separación mediante columnas de intercambio iónico (HASL, 1976, Gascó et al., 1988), usando una concentración conocida de Sr como portador. En primer lugar se realiza una digestión ácida de una alícuota de la muestra de aerosoles acumulada mensualmente, equivalente a unos 180000  $\text{m}^3$ , con una mezcla de  $\text{HNO}_3$  y HCl al 50%. Posteriormente se aumenta el volumen a 1L con agua bidestilada y se adiciona EDTA (ácido etilendiaminotetraacético) y finalmente se ajusta el pH a 4.8 para acomplejar el calcio presente en la muestra. A continuación, la muestra se pasa a través de una columna con resina Dowex 50Wx8, que a ese pH retiene sólo el estroncio. Éste se eluye mediante una solución de NaCl, y se precipita a pH 8 como  $\text{SrCO}_3$  en una plancheta de acero estriada. El rendimiento químico se determina mediante gravimetría. Una vez que se alcanza el equilibrio  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$  en la muestra (tras 21 días de espera), ésta se mide en un contador proporcional de flujo de gas.

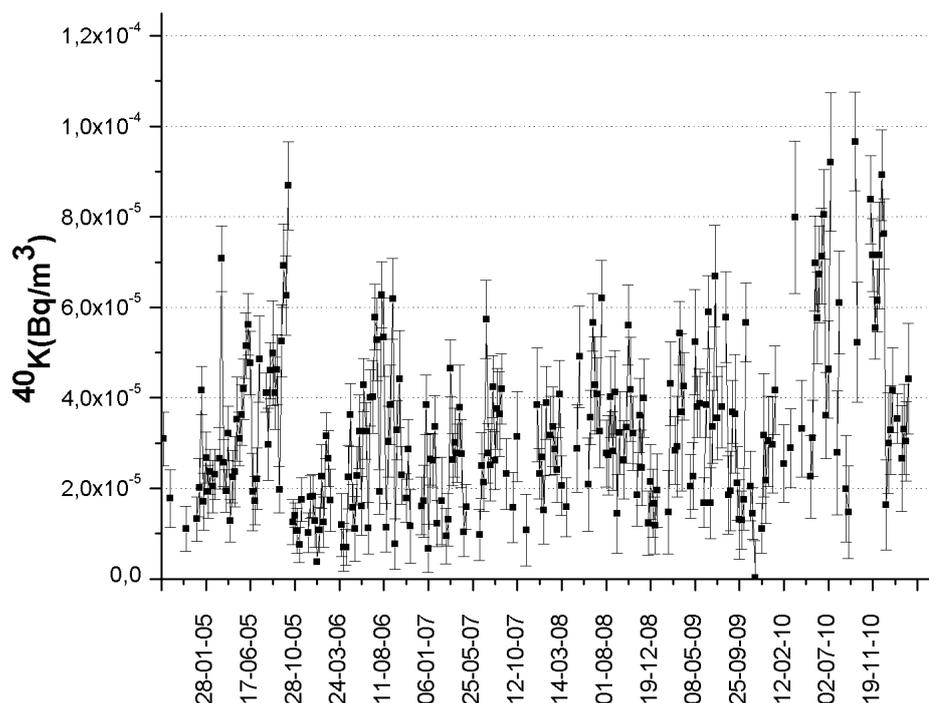
#### **4.3.- Análisis del contenido de radionucleidos de origen primordial:**

Los radionucleidos de origen primordial que se han medido sistemáticamente por espectrometría  $\gamma$ , son  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{40}\text{K}$  en las muestras de filtro recolectadas semanalmente. Dada la sistemática seguida en la preparación de las muestras, las medidas de estos filtros se realizaron en un lapso de tiempo tras el fin de su recolección, inferior a los 21 días necesarios para que alcancen el equilibrio secular del  $^{226}\text{Ra}$  con los descendientes del radón. Por este motivo, se ha realizado en varias de las muestras acumuladas mensualmente, las separaciones radioquímicas de uranio, radio y torio para medir las actividades de  $^{234,235,238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  y  $^{228,230,232}\text{Th}$  por espectrometría  $\alpha$ .

##### **4.3.1.- $^{40}\text{K}$ :**

La figura 4.1 muestra evolución temporal de los niveles de  $^{40}\text{K}$  en los filtros recolectados semanalmente durante el periodo de septiembre de 2004 a marzo de 2011, siendo el tercer radionucleido para el que se observa con una mayor frecuencia, niveles de actividad neta, concretamente en el 71.1 %. El valor medio de su actividad durante este periodo es del  $(3.3 \pm 1.8 \text{ (S.D.)} \cdot 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$ , con un rango de actividades  $(0.02 - 9.7) \cdot 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$ . Este rango de variación es similar el detectado en Polonia  $(0.96 - 2.27) \cdot 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$  (Grabowska et al., 2003).

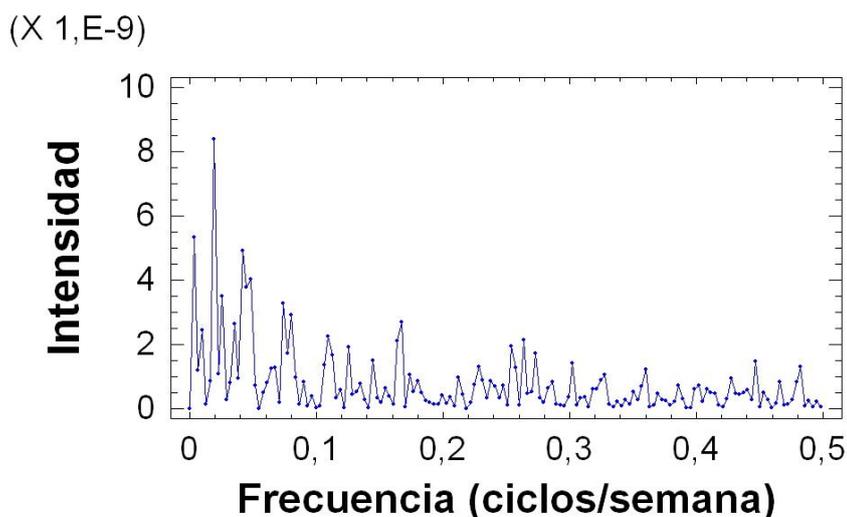
Se observa una ligera variación temporal en los valores medios para las diferentes estaciones del año, siendo el correspondiente al verano ligeramente superior y el menor el correspondiente al invierno (ver tabla 3.6). El periodograma de la concentración del  $^{40}\text{K}$  durante los años 2005 a 2010 muestra una frecuencia dominante de 52 semanas (ver figura 4.2), siendo su intensidad de  $8,39 \cdot 10^{-9}$ . Sin embargo, no se ha detectado ninguna correlación significativamente estadística con las variables meteorológicas promedios mensuales que se han utilizado sistemáticamente, siendo  $r < 0.38$  en todos los casos. De los resultados antes indicados puede señalarse que explicar el origen de la periodicidad anual que muestra la evolución temporal de las actividades del  $^{40}\text{K}$ , es más compleja que la exhibida por los radionucleidos cosmogénicos antes analizados, dado que para que se produzca su resuspensión del suelo se precisa de la acción coordinada de varias condiciones del entorno, tales como, la conjunción de un suelo con baja humedad relativa, unido a la existencia de vientos lo suficientemente intensos para que permita la citada resuspensión. Lamentablemente no se dispone para el periodo aquí estudiado de dicha información, para corroborar la hipótesis aquí efectuada.



**Figura 4.1. Evolución temporal del nivel de actividad de  $^{40}\text{K}$ , expresado en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , durante el periodo de Septiembre de 2004 a Marzo de 2011.**

	<b>Primavera</b>	<b>Verano</b>	<b>Otoño</b>	<b>Invierno</b>
<b>N</b>	57	66	53	64
<b><math>^{40}\text{K}</math> (<math>\text{Bq}/\text{m}^3</math>)</b>	$(3.3 \pm 1.7) \cdot 10^{-5}$	$(3.6 \pm 1.6) \cdot 10^{-5}$	$(3.3 \pm 2.4) \cdot 10^{-5}$	$(2.8 \pm 1.5) \cdot 10^{-5}$
<b>Rango (<math>\text{Bq}/\text{m}^3</math>)</b>	$(0.70 - 8.1) \cdot 10^{-5}$	$(0.78 - 9.2) \cdot 10^{-5}$	$(0.02 - 9.7) \cdot 10^{-5}$	$(0.37 - 8.0) \cdot 10^{-5}$

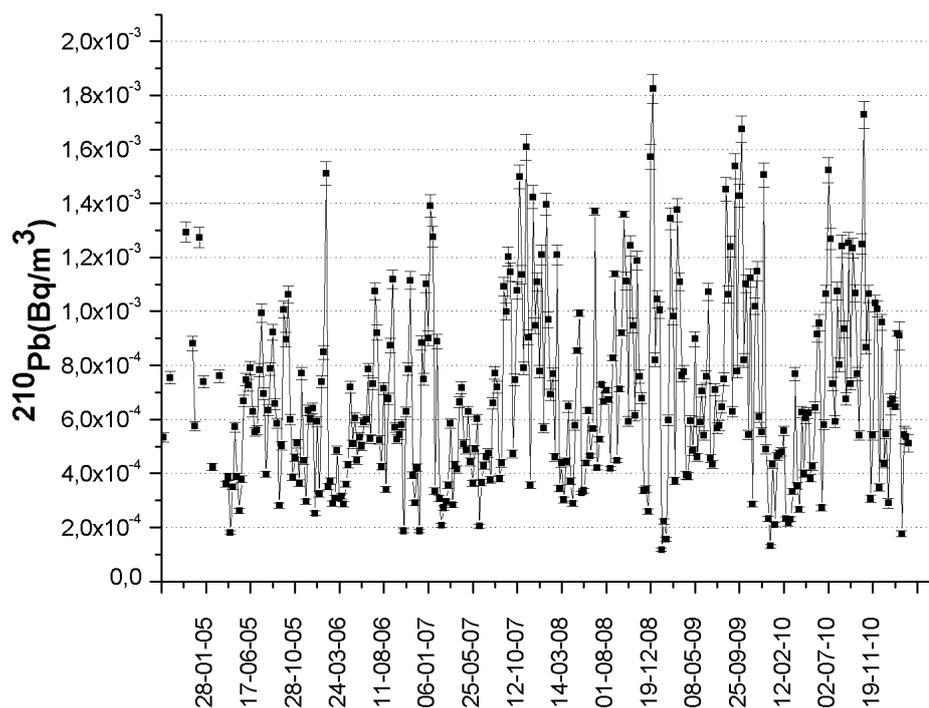
**Tabla 4.1. Valor medio, desviación estándar y rango de variación de la concentración de  $^{40}\text{K}$ , expresada en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , en las diferentes estaciones del año. N es el número de filtros en los que se ha detectado actividad neta.**



**Figura 4.2. Periodograma correspondiente a la serie temporal de la concentración de <sup>40</sup>K durante los años 2005 a 2010.**

#### **4.3.2.- <sup>210</sup>Pb:**

La presencia de <sup>210</sup>Pb en la atmósfera se debe, entre otras causas, a la exhalación de radón desde el suelo, como consecuencia de la desintegración del <sup>226</sup>Ra presente en el mismo y la posterior resuspensión de partículas de suelo. En la figura 4.3 se muestra la evolución temporal de la concentración de <sup>210</sup>Pb en los filtros recolectados con frecuencia semanal. Este radionucleido es el que ocupa el segundo lugar, tras el <sup>7</sup>Be, en la frecuencia con que se detectan niveles de actividad neta en los citados filtros semanales, concretamente en el 93.4 %. El valor medio de la concentración de <sup>210</sup>Pb es  $(0.69 \pm 0.34 \text{ (S.D.)}) \cdot 10^{-3} \text{ Bq/m}^3$ , con un rango de variación de  $(0.12 - 1.82) \cdot 10^{-3} \text{ Bq/m}^3$ . Los valores obtenidos se encuentran dentro del rango detectado en otros países, y que se muestra en la tabla 4.2. Estos rangos son menores que los niveles de radón en exteriores detectados en nuestro país,  $(0.6 - 9) \text{ Bq/m}^3$  (Arnold et al., 2009), ya que tras la desintegración del radón, parte del <sup>210</sup>Pb generado se deposita sobre la capa superficial del suelo.



**Figura 4.3. Evolución temporal del nivel de actividad de  $^{210}\text{Pb}$ , expresado en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , durante el periodo Septiembre de 2004 a Marzo de 2011.**

País	Rango $^{210}\text{Pb}$	Referencias
Francia	$(0.333 - 1.35) \cdot 10^{-3}$	(Bourcier et al., 2011)
España	$(0.004 - 1.44) \cdot 10^{-3}$	(Camacho et al., 2009; Dueñas et al.,
Japón	$(0.18 - 0.93) \cdot 10^{-3}$	(Abe et al., 2010)
Italia	$(0.05 - 2.3) \cdot 10^{-3}$	(Tositti et al., 2014)
Mónaco	$(0.22 - 2.82) \cdot 10^{-3}$	(Pham et al., 2011)
Pakistán	$(0.056 - 0.76) \cdot 10^{-3}$	(Ali et al., 2011)
Polonia	$(0.096 - 0.23) \cdot 10^{-3}$	(Grabowska et al., 2003)
Portugal	$(0.036 - 4.3) \cdot 10^{-3}$	(Carvalho et al., 1995;Carvalho et al.,

**Tabla 4.2. Rangos de variación de la concentración de  $^{210}\text{Pb}$ , expresados en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , detectados en varios países.**

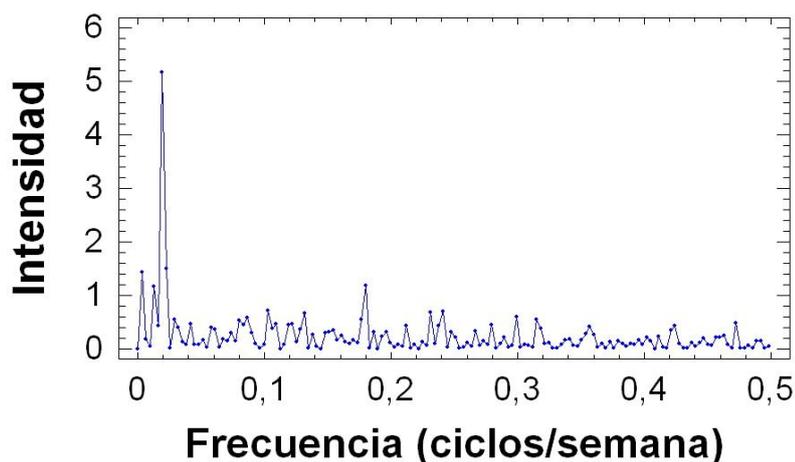
Como se puede observar en la figura 4.3, existe una clara periodicidad en la evolución temporal de la concentración de  $^{210}\text{Pb}$ , siendo los valores medios detectados en los meses de verano y otoño ligeramente superiores a los observados en primavera e invierno (ver tabla 4.3). Para cuantificar esta tendencia

se ha realizado el periodograma de la serie temporal de la concentración de  $^{210}\text{Pb}$  durante los años 2005 a 2010 que se muestra en la figura 4.4. La frecuencia principal corresponde a una periodicidad anual, es decir 52 semanas. Finalmente, no se ha detectado ninguna correlación estadísticamente significativa con las variables meteorológicas con frecuencia mensual sistemáticamente analizadas (radiación solar, temperatura, precipitación acumulada mensual y presión), siendo los coeficientes de correlación menores que 0.26.

	Primavera	Verano	Otoño	Invierno
<b>N</b>	77	81	81	78
<b><math>^{210}\text{Pb}</math> (Bq/m<sup>3</sup>)</b>	$(5.3 \pm 1.9) \cdot 10^{-4}$	$(7.6 \pm 3.0) \cdot 10^{-4}$	$(8.1 \pm 3.9) \cdot 10^{-4}$	$(6.4 \pm 3.9) \cdot 10^{-4}$
<b>Rango (Bq/m<sup>3</sup>)</b>	$(1.8 - 10.7) \cdot 10^{-4}$	$(2.8 - 15.3) \cdot 10^{-4}$	$(1.9 - 17.3) \cdot 10^{-4}$	$(1.2 - 18.2) \cdot 10^{-4}$

**Tabla 4.3. Valor medio, desviación estándar y rango de variación de la concentración de  $^{210}\text{Pb}$ , expresada en Bq/m<sup>3</sup>, en las diferentes estaciones del año. N es el número de filtros en los que se ha detectado actividad neta.**

(X 0,000001)



**Figura 4.4. Periodograma correspondiente a la serie temporal de la concentración de  $^{210}\text{Pb}$  durante los años 2005 a 2010.**

La causa de esa carencia de correlación significativa, debe buscarse como en el caso del  $^{40}\text{K}$ , en que las variables que dominan su presencia en la atmósfera no deben obedecer a una evolución temporal sencilla, sino que por el contrario deben estar ligadas a una conjunción de características del suelo del entorno, tales como su humedad relativa y su porosidad, y meteorológicas, tales como las temperaturas y velocidades de viento, entre otras.

#### **4.3.3.- U, Ra y Th:**

Como se ha comentado anteriormente, la presencia de  $^{210}\text{Pb}$  en los aerosoles se debe a la exhalación de radón, como consecuencia de la desintegración de  $^{226}\text{Ra}$ , que pertenece a la serie natural del uranio. Para analizar el comportamiento de las concentraciones presentes en el aire para radionucleidos pertenecientes a las series radiactivas naturales diferentes del precipitado  $^{210}\text{Pb}$ , se han realizado las separaciones radioquímicas de uranio, radio y torio, en un conjunto de filtros de aerosoles acumulados mensuales, correspondientes concretamente a todos los meses del año 2005. En la tabla 4.4 se listan los niveles de actividad y los respectivos valores medios correspondientes a  $^{234,238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  y  $^{228,230,232}\text{Th}$  en dichas muestras. Los radionucleidos correspondientes a la serie del uranio son  $^{238,234}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th}$  y  $^{226}\text{Ra}$ , junto con el anteriormente mencionado  $^{210}\text{Pb}$ ; mientras que  $^{232}\text{Th}$  y  $^{228}\text{Th}$  pertenecen a la serie del torio. Los niveles de actividad detectados para estos radionucleidos son del orden del  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .

El valor medio del ratio  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  en las muestras analizadas es  $(1.02 \pm 0.17$  (S.D.)), indicando que estos dos radionucleidos están en equilibrio secular. El  $^{230}\text{Th}$  y  $^{234}\text{U}$  también se encuentran en equilibrio secular, con un valor medio del cociente  $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$  de  $(1.0 \pm 0.3$  (S.D.)). Sin embargo, el cociente  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$  es  $(1.6 \pm 0.4$  (S.D.)), de modo que el  $^{226}\text{Ra}$  no está en equilibrio con sus predecesores.

Código	Fecha Cero	<sup>234</sup> U (Bq/m <sup>3</sup> )	<sup>238</sup> U (Bq/m <sup>3</sup> )	<sup>226</sup> Ra (Bq/m <sup>3</sup> )	<sup>228</sup> Th (Bq/m <sup>3</sup> )	<sup>230</sup> Th (Bq/m <sup>3</sup> )	<sup>232</sup> Th (Bq/m <sup>3</sup> )
HFENE05	14/01/05	(0.93±0.21)·10 <sup>-6</sup>	(0.91±0.21)·10 <sup>-6</sup>	(1.5±0.4)·10 <sup>-6</sup>	(1.10±0.14)·10 <sup>-6</sup>	(1.18±0.14)·10 <sup>-6</sup>	(0.55±0.09)·10 <sup>-6</sup>
HFEB05	15/03/05	(0.86±0.17)·10 <sup>-6</sup>	(0.73±0.15)·10 <sup>-6</sup>	(1.5±0.3)·10 <sup>-6</sup>	(0.92±0.11)·10 <sup>-6</sup>	(1.16±0.13)·10 <sup>-6</sup>	(0.85±0.11)·10 <sup>-6</sup>
HFMAR05	18/03/05	(1.11±0.21)·10 <sup>-6</sup>	(1.17±0.21)·10 <sup>-6</sup>	(1.4±0.4)·10 <sup>-6</sup>	(0.88±0.12)·10 <sup>-6</sup>	(0.87±0.12)·10 <sup>-6</sup>	(0.64±0.10)·10 <sup>-6</sup>
HFABR05	19/04/05	(0.86±0.17)·10 <sup>-6</sup>	(0.69±0.15)·10 <sup>-6</sup>	(1.3±0.4)·10 <sup>-6</sup>	(1.01±0.17)·10 <sup>-6</sup>	(0.99±0.17)·10 <sup>-6</sup>	(0.75±0.14)·10 <sup>-6</sup>
HFMAY05	17/04/05	(1.32±0.22)·10 <sup>-6</sup>	(1.33±0.22)·10 <sup>-6</sup>	(1.5±0.4)·10 <sup>-6</sup>	(1.39±0.22)·10 <sup>-6</sup>	(1.26±0.21)·10 <sup>-6</sup>	(0.91±0.17)·10 <sup>-6</sup>
HFJUN05	14/06/05	(1.9±0.4)·10 <sup>-6</sup>	(1.4±0.3)·10 <sup>-6</sup>	(2.4±0.7)·10 <sup>-6</sup>	(2.19±0.21)·10 <sup>-6</sup>	(1.96±0.19)·10 <sup>-6</sup>	(1.40±0.16)·10 <sup>-6</sup>
HFJUL05	08/07/05	(1.8±0.3)·10 <sup>-6</sup>	(2.7±0.5)·10 <sup>-6</sup>	(3.6±0.9)·10 <sup>-6</sup>	(2.29±0.22)·10 <sup>-6</sup>	(3.0±0.3)·10 <sup>-6</sup>	(1.96±0.20)·10 <sup>-6</sup>
HFAGO05	19/08/05	(1.8±0.3)·10 <sup>-6</sup>	(1.6±0.3)·10 <sup>-6</sup>	(3.5±1.1)·10 <sup>-6</sup>	(2.9±0.3)·10 <sup>-6</sup>	(2.7±0.3)·10 <sup>-6</sup>	(1.77±0.20)·10 <sup>-6</sup>
HFSEP05	16/09/05	(2.0±0.4)·10 <sup>-6</sup>	(2.0±0.4)·10 <sup>-6</sup>	(2.6±0.7)·10 <sup>-6</sup>	(1.54±0.15)·10 <sup>-6</sup>	(2.19±0.19)·10 <sup>-6</sup>	(1.51±0.15)·10 <sup>-6</sup>
HFOCT05	15/10/05	(1.7±0.4)·10 <sup>-6</sup>	(1.84±0.4)·10 <sup>-6</sup>	(2.1±0.6)·10 <sup>-6</sup>	(1.03±0.9)·10 <sup>-6</sup>	(1.02±0.09)·10 <sup>-6</sup>	(0.91±0.08)·10 <sup>-6</sup>
HFNOV05	15/11/05	(0.87±0.14)·10 <sup>-6</sup>	(0.96±0.15)·10 <sup>-6</sup>	(2.1±0.9)·10 <sup>-6</sup>	(0.61±0.9)·10 <sup>-6</sup>	(0.60±0.09)·10 <sup>-6</sup>	(0.35±0.07)·10 <sup>-6</sup>
HFDIC05	16/12/05	(0.73±0.12)·10 <sup>-6</sup>	(0.98±0.15)·10 <sup>-6</sup>	(1.9±0.8)·10 <sup>-6</sup>	(0.54±0.9)·10 <sup>-6</sup>	(0.24±0.06)·10 <sup>-6</sup>	(0.38±0.08)·10 <sup>-6</sup>
<b>V.M. ± S.D.</b>		(1.4±0.5)·10 <sup>-6</sup>	(1.4±0.6)·10 <sup>-6</sup>	(2.1±0.8)·10 <sup>-6</sup>	(1.4±0.7)·10 <sup>-6</sup>	(1.4±0.8)·10 <sup>-6</sup>	(1.0±0.5)·10 <sup>-6</sup>

Tabla 4.4. Niveles de actividad y valores medios de <sup>234,235,238</sup>U, <sup>226</sup>Ra y <sup>228,230,232</sup>Th, expresados en Bq/m<sup>3</sup>, de muestras de aerosoles acumuladas mensualmente.

Evidentemente, el  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{226}\text{Ra}$  no están en equilibrio, ya que el primero es un descendiente del  $^{226}\text{Ra}$  que tiene lugar tras la emisión del radón, que es un gas, y por lo tanto, existe un enriquecimiento de  $^{210}\text{Pb}$  en los aerosoles, siendo el valor medio del cociente  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$  ( $310 \pm 120$  (S.D.)). Finalmente, el valor medio del cociente  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  ( $1.4 \pm 0.3$  (S.D.)) lo que indica la existencia de un desequilibrio entre estos dos isótopos de la serie del torio, incrementándose la movilidad del más ligero.

Las concentraciones de estos radionucleidos presentan correlaciones estadísticamente significativas con la radiación solar y la temperatura, de acuerdo con las ecuaciones 4.1 y 4.2. En la tabla 4.5 se listan los parámetros de ajuste, pendiente y ordenada en el origen, y el correspondiente coeficiente de correlación para cada radionucleido emisor  $\alpha$ . Dado que el origen de los mismos no es cosmogénico, la correlación con la radiación solar es un reflejo de la relación existente entre ésta y la temperatura. Por su parte, las correlaciones lineales con la precipitación acumulada y la presión, aunque se intuye que son negativas, no son estadísticamente significativas,  $r < 0.38$ .

$$\text{Radionucleido (Bq/m}^3\text{)} = a \cdot R (10^4 \text{ J/m}^2) + b \quad (4.1)$$

$$\text{Radionucleido (Bq/m}^3\text{)} = c \cdot T (\text{C}) + d \quad (4.2)$$

Radion.	Radiación solar ( $\times 10^4 \text{ J/m}^2$ )			Temperatura ( $^{\circ}\text{C}$ )		
	a ( $\times 10^{-10}$ ) ( $\cdot 10^4 \text{ J} \cdot \text{m/Bq}$ )	b ( $\times 10^{-7}$ ) ( $\text{Bq/m}^3$ )	R	c ( $\times 10^{-8}$ ) ( $^{\circ}\text{C} \cdot \text{m}^3/\text{Bq}$ )	d ( $\times 10^{-7}$ ) ( $\text{Bq/m}^3$ )	R
$^{238}\text{U}$	$4.1 \pm 2.1$	$5 \pm 5$	0.816	$5.7 \pm 1.6$	$4 \pm 3$	0.749
$^{234}\text{U}$	$6.0 \pm 1.8$	$0 \pm 4$	0.921	$6.3 \pm 1.0$	$3.3 \pm 1.7$	0.901
$^{230}\text{Th}$	$12.2 \pm 1.5$	$-12 \pm 4$	0.985	$9.0 \pm 1.8$	$-1 \pm 3$	0.847
$^{226}\text{Ra}$	$6.9 \pm 1.7$	$10 \pm 4$	0.946	$7.6 \pm 2.0$	$9 \pm 4$	0.768
$^{232}\text{Th}$	$7.7 \pm 0.6$	$-6.7 \pm 1.5$	0.993	$6.2 \pm 0.9$	$-0.2 \pm 1.7$	0.903
$^{228}\text{Th}$	$11.0 \pm 2.2$	$-10 \pm 5$	0.963	$8.2 \pm 1.4$	$0.1 \pm 2.5$	0.887

Tabla 4.5. Parámetros de ajuste, pendiente, ordenada y coeficiente de correlación lineal de las ecuaciones 4.1 y 4.2, para los radionucleidos que se indican.

#### **4.4.- Análisis del contenido de radionucleidos de origen artificial:**

La presencia de radionucleidos de origen artificial en el periodo comprendido entre septiembre de 2004 a marzo de 2011, es decir, con anterioridad al incidente de Fukushima, son prácticamente debidos de forma exclusiva a la resuspensión de las partículas de suelo (Sýkora et al., 2012), cuyo contenido radiactivo para los suelos del entorno de la estación de monitoraje localizada en Cáceres, se debe a los restos del fallout de las explosiones nucleares atmosféricas.

##### **4.4.1.- <sup>137</sup>Cs:**

La figura 4.5 muestra la variación de la concentración de <sup>137</sup>Cs en dicho periodo, detectándose actividad neta en el 24.4% de los filtros. El valor medio es  $(0.6 \pm 0.4 \text{ (S.D.)}) \cdot 10^{-6} \text{ Bq/m}^3$ , dentro del rango de variación  $(0.5 - 3.8) \cdot 10^{-6} \text{ Bq/m}^3$ . En dicha gráfica se observa un pico de concentración de <sup>137</sup>Cs correspondiente al periodo 30/07/2010 al 12/08/2010. Este pico es coincidente con el gran número de incendios que asoló la zona limítrofe con Extremadura de Portugal en esa época, detectándose en el cielo de Cáceres una significativa presencia de humo, que se anotó en el registro de incidencias de recolección de los filtros. Uno de los impactos de los citados incendios forestales fue un aumento aproximado del 20% de la cantidad de materia particulada recolectada en los aerosoles (Martins et al., 2012). Como consecuencia, la presencia de humo en el ambiente es uno de los factores que incrementa la presencia de <sup>137</sup>Cs en los aerosoles, debido a la presencia de partículas finas de cenizas de árboles, en las que se ha concentrado por calcinación el <sup>137</sup>Cs acumulado en los mismos (Paatero et al., 2009). El rango de variación del <sup>137</sup>Cs en la atmósfera de Cáceres al eliminar estas concentraciones anómalas debido a la presencia de humo en el aire, es  $(0.5 - 1.7) \cdot 10^{-6} \text{ Bq/m}^3$ , que es similar a los detectados en otros países (ver tabla 4.6)

País	Rango $^{137}\text{Cs}$ ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ )	Referencias
Eslovaquia	$(0.04 - 1.6) \cdot 10^{-6}$	(Povinec et al., 2012)
Francia	$(0.10 - 1.78) \cdot 10^{-6}$	(Bourcier et al., 2011)
Mónaco	$(0.1 - 0.7) \cdot 10^{-6}$	(Pham et al., 2011)
Polonia	$(0.7 - 3.5) \cdot 10^{-6}$	(Grabowska et al., 2003)

Tabla 4.6. Rangos de variación de la concentración de  $^{137}\text{Cs}$ , expresados en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , detectados en varios países.

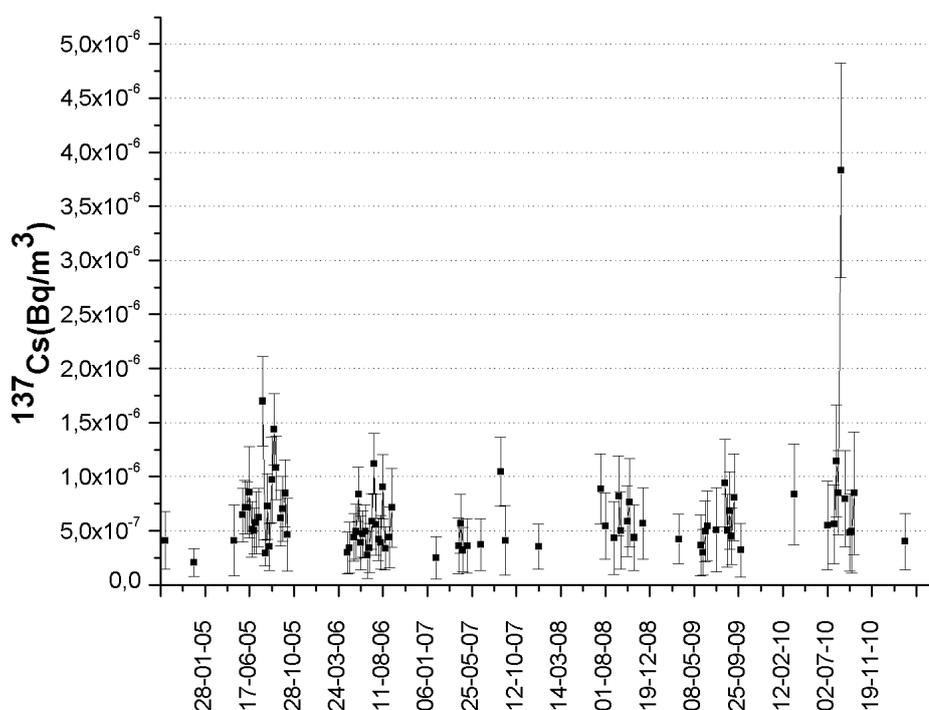


Figura. 4.5. Evolución temporal del nivel de actividad de  $^{137}\text{Cs}$ , expresado en  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , durante el periodo de Septiembre de 2004 a Marzo de 2011.

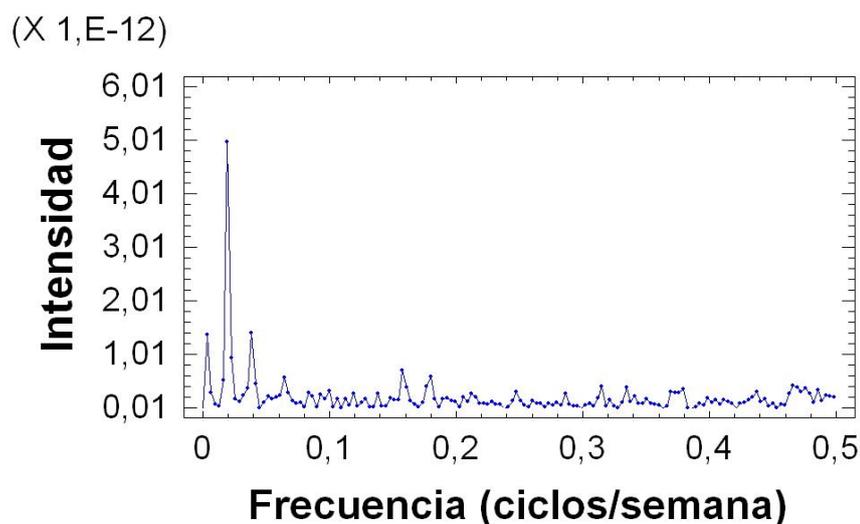
En la figura 4.5 se observa una variación estacional de la concentración de  $^{137}\text{Cs}$ . Esta variación se ve más claramente al agrupar los filtros recolectados semanalmente en cada una de las estaciones del año, lo cual se recopila en la tabla 4.7. De esta forma, en la citada tabla se observa un máximo en el valor medio para los meses de verano, y también una dependencia del número de filtros en los que se

detectado el  $^{137}\text{Cs}$ , siendo éste mayor en los meses de verano, seguido de primavera, otoño e invierno.

	Primavera	Verano	Otoño	Invierno
<b>N</b>	21	46	11	5
<b><math>^{137}\text{Cs}</math> (Bq/m<sup>3</sup>)</b>	$(5.0 \pm 1.7) \cdot 10^{-7}$	$(7 \pm 3) \cdot 10^{-7}$	$(5.5 \pm 2.2) \cdot 10^{-7}$	$(4.8 \pm 2.5) \cdot 10^{-7}$
<b>Rango (Bq/m<sup>3</sup>)</b>	$(3.0-8.6) \cdot 10^{-7}$	$(2.8-38.3) \cdot 10^{-7}$	$(2.1-8.5) \cdot 10^{-7}$	$(2.5-8.4) \cdot 10^{-7}$

**Tabla 4.7. Valor medio, desviación estándar y rango de variación de la concentración de  $^{137}\text{Cs}$ , expresada en Bq/m<sup>3</sup>, en las diferentes estaciones del año. N es el número de filtros en los que se ha detectado actividad neta.**

Esta variación estacional se confirma en el periodograma de la concentración de  $^{137}\text{Cs}$  durante el periodo 2005 a 2010, que se muestra en la figura 4.6. La frecuencia más intensa es de  $4,97 \cdot 10^{-12}$  y corresponde a un periodo de 52 semanas, es decir, periodicidad anual



**Figura 4.6. Periodograma correspondiente a la serie temporal de la concentración de  $^{137}\text{Cs}$  durante los años 2005 a 2010.**

La concentración de  $^{137}\text{Cs}$  está correlacionada con la radiación solar y la temperatura (ver ecuaciones 4.3 y 4.4), mientras que el coeficiente de correlación lineal con la precipitación mensual y la presión no son estadísticamente significativa,  $r < 0.14$ . La correlación con la radiación solar es un reflejo de la correlación existente con la temperatura, ya que éste radionucleido no tiene un origen cosmogénico.

$$^{137}\text{Cs}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (2.3 \pm 0.7) \cdot 10^{-10} \cdot R(10^4 \text{ J}/\text{m}^2) - (1 \pm 2) \cdot 10^{-7} ; r = 0.516 \quad (4.3)$$

$$^{137}\text{Cs}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (2.3 \pm 0.6) \cdot 10^{-8} \cdot T(^{\circ}\text{C}) + (0.2 \pm 1.1) \cdot 10^{-7} ; r = 0.535 \quad (4.4)$$

#### 4.4.2.- $^{90}\text{Sr}$ :

La determinación de la concentración de  $^{90}\text{Sr}$  se determinó en las muestras de filtros de aerosoles acumulados mensualmente para el año 2005, cuyos resultados se muestran en la tabla 4.8. El valor medio de es de  $(0.33 \pm 0.44 \text{ (S.D.)}) \cdot 10^{-6} \text{ Bq}/\text{m}^3$ , dentro del rango de variación de  $(0.05 - 1.36) \cdot 10^{-6} \text{ Bq}/\text{m}^3$ . El cociente  $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$  para las muestras acumuladas mensualmente es de  $(0.9 \pm 0.6 \text{ (S.D.)})$ , con un rango de variación de  $(0.36 - 2.11)$ , indicando que la concentración de ambos radionucleidos artificiales son aproximadamente del mismo orden en los aerosoles de Cáceres.

Código	Fecha Cero	$^{90}\text{Sr}$ (Bq/m <sup>3</sup> )	Código	Fecha Cero	$^{90}\text{Sr}$ (Bq/m <sup>3</sup> )
HFENE05	14/01/05	$(1.0 \pm 0.2) \cdot 10^{-7}$	HFJUL05	08/07/05	$(13.5 \pm 0.8) \cdot 10^{-7}$
HFEB05	15/03/05	$(1.3 \pm 0.2) \cdot 10^{-7}$	HFAGO05	19/08/05	$(10.9 \pm 0.7) \cdot 10^{-7}$
HFMAR05	18/03/05	$(1.68 \pm 0.21) \cdot 10^{-7}$	HFSEP05	16/09/05	$(5.3 \pm 0.3) \cdot 10^{-7}$
HFABR05	19/04/05	$(0.74 \pm 0.17) \cdot 10^{-7}$	HFOCT05	15/10/05	$(1.6 \pm 0.2) \cdot 10^{-7}$
HFMAY05	17/04/05	$(0.90 \pm 0.20) \cdot 10^{-7}$	HFNOV05	15/11/05	$(0.46 \pm 0.13) \cdot 10^{-7}$
HFJUN05	14/06/05	$(2.01 \pm 0.24) \cdot 10^{-7}$	HFDIC05	16/12/05	$(0.92 \pm 0.17) \cdot 10^{-7}$

**Tabla 4.8. Niveles de actividad de  $^{90}\text{Sr}$ , expresados en Bq/m<sup>3</sup>, de muestras de aerosoles acumuladas mensualmente**

La concentración de  $^{90}\text{Sr}$ , al igual que la del  $^{137}\text{Cs}$ , también presenta una variación con la radiación solar y la temperatura, con las mismas consideraciones que se han comentado anteriormente para el  $^{137}\text{Cs}$ . Las correlaciones con la precipitación acumulada y la presión no son estadísticamente significativas,  $r < 0.35$ .

$${}^{90}\text{Sr}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (4.9 \pm 0.8) \cdot 10^{-10} \cdot R(10^4 \text{ J}/\text{m}^2) - (6.3 \pm 2.0) \cdot 10^{-7}; r = 0.917 \quad (4.5)$$

$${}^{90}\text{Sr}(\text{Bq}/\text{m}^3) = (4.0 \pm 1.2) \cdot 10^{-8} \cdot T(^{\circ}\text{C}) - (3.2 \pm 2.2) \cdot 10^{-7}; r = 0.719 \quad (4.6)$$

#### 4.4.3.- ${}^{239+240}\text{Pu}$ y ${}^{241}\text{Am}$ :

Las separaciones radioquímicas de  ${}^{239+240}\text{Pu}$  y  ${}^{241}\text{Am}$  se han realizado únicamente en tres muestras de filtros de aerosoles acumuladas mensualmente, correspondientes al primer trimestre de 2005, mostrándose los resultados en la tabla 4.9. El valor medio de  ${}^{239+240}\text{Pu}$  es de  $(2.76 \pm 0.19 \text{ (S.D.)}) \cdot 10^{-8} \text{ Bq}/\text{m}^3$ , encontrándose dentro del rango de concentraciones detectadas en Praga  $(0.53 - 21.7) \cdot 10^{-8} \text{ Bq}/\text{m}^3$  (Hölgge, 2008). El valor medio del cociente  ${}^{239+240}\text{Pu}/{}^{137}\text{Cs}$  es  $(0.17 \pm 0.13 \text{ (S.D.)})$ . Por su parte, en las determinaciones de  ${}^{241}\text{Am}$ , no se ha detectado actividad neta en ninguna muestra analizada, siendo éstas inferiores al límite de detección del procedimiento, y por lo tanto, menor que la actividad medida para el  ${}^{239+240}\text{Pu}$ . Como el origen remoto de ambos elementos radiactivos en el entorno de Cáceres es el mismo, el depósito radiactivo habido tras las explosiones nucleares atmosféricas, y el término fuente próximo también coincide, la resuspensión desde el suelo del citado entorno, la única explicación plausible de los resultados de la tabla 4.9 debe ser que el  ${}^{241}\text{Am}$  está asociado a partículas de mayor tamaño y por lo tanto, tiene más dificultad que el  ${}^{239+240}\text{Pu}$  en ser resuspendido a la atmósfera. Esta hipótesis se verificará experimentalmente en un futuro.

Código	Fecha cero	${}^{239+240}\text{Pu}$ (Bq/m <sup>3</sup> )	${}^{241}\text{Am}$ (Bq/m <sup>3</sup> )
HFENE05	14/01/05	$(2.6 \pm 0.4) \cdot 10^{-8}$	$< 1.0 \cdot 10^{-9}$
HFEB05	15/03/05	$(2.7 \pm 0.9) \cdot 10^{-8}$	$< 4.8 \cdot 10^{-9}$
HFMAR05	18/03/05	$(3.0 \pm 0.6) \cdot 10^{-8}$	$< 1.5 \cdot 10^{-8}$

Tabla 4.9. Niveles de actividad de  ${}^{239+240}\text{Pu}$  y  ${}^{241}\text{Am}$ , expresados en Bq/m<sup>3</sup>, de muestras de aerosoles acumuladas mensualmente.

#### **4.5.- Modelización y Predicción:**

De la misma manera que para los radionucleidos cosmogénicos, y una vez se han analizado las estructuras temporales para el  $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{137}\text{Cs}$ , así como sus correlaciones con las diferentes variables meteorológicas, se han ajustado dichas evoluciones mediante modelos de regresión múltiple, dependientes de algunas de estas variables meteorológicas.

El periodo objeto de estudio es el mismo que el detallado en el capítulo 3 de la presente memoria.

##### **4.5.1.- Modelización de la evolución temporal del $^{40}\text{K}$ y $^{210}\text{Pb}$ :**

En las gráficas 4.7.a y 4.8.a se presenta la precipitación semanalmente acumulada registrada en Cáceres, junto con los niveles de actividad de  $^{40}\text{K}$  y  $^{210}\text{Pb}$  respectivamente, para todo el periodo objeto de estudio. Se puede apreciar cómo en aquellas semanas en las que no existe precipitación, los niveles de actividad para ambos radionucleidos son mayores. Dado que durante dichas semanas se produce también una mayor irradiación solar, éste último mecanismo debe así mismo favorecer la resuspensión desde el suelo de ambos radionucleidos. Por otra parte, también parece lógico que en las semanas posteriores a aquellas en las que ha existido una precipitación elevada, los niveles de actividad de  $^{40}\text{K}$  y  $^{210}\text{Pb}$  aumenten en la atmósfera, como consecuencia del efecto de limpieza que la lluvia ejerció sobre ésta, favoreciendo la deposición de dichos radionucleidos desde la misma al suelo. Además de todos estos mecanismos, los máximos niveles de actividad de  $^{40}\text{K}$  y  $^{210}\text{Pb}$  que se detectan durante los meses más cálidos (figuras 4.7.b y 4.8.b) han de verse favorecidos por los movimientos verticales de aire que se producen por el calentamiento de la tierra y que favorecen la resuspensión de los mismos desde el suelo.

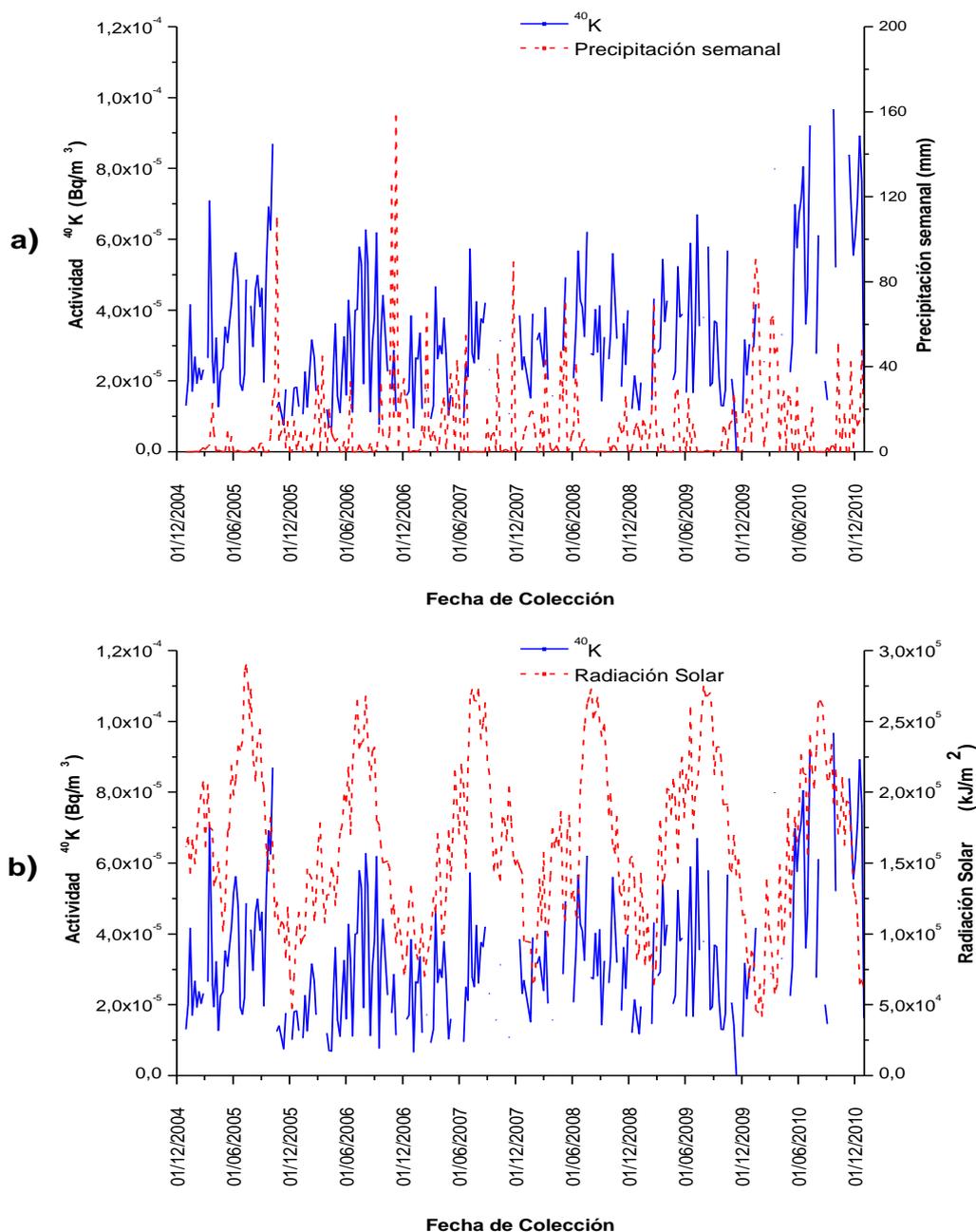
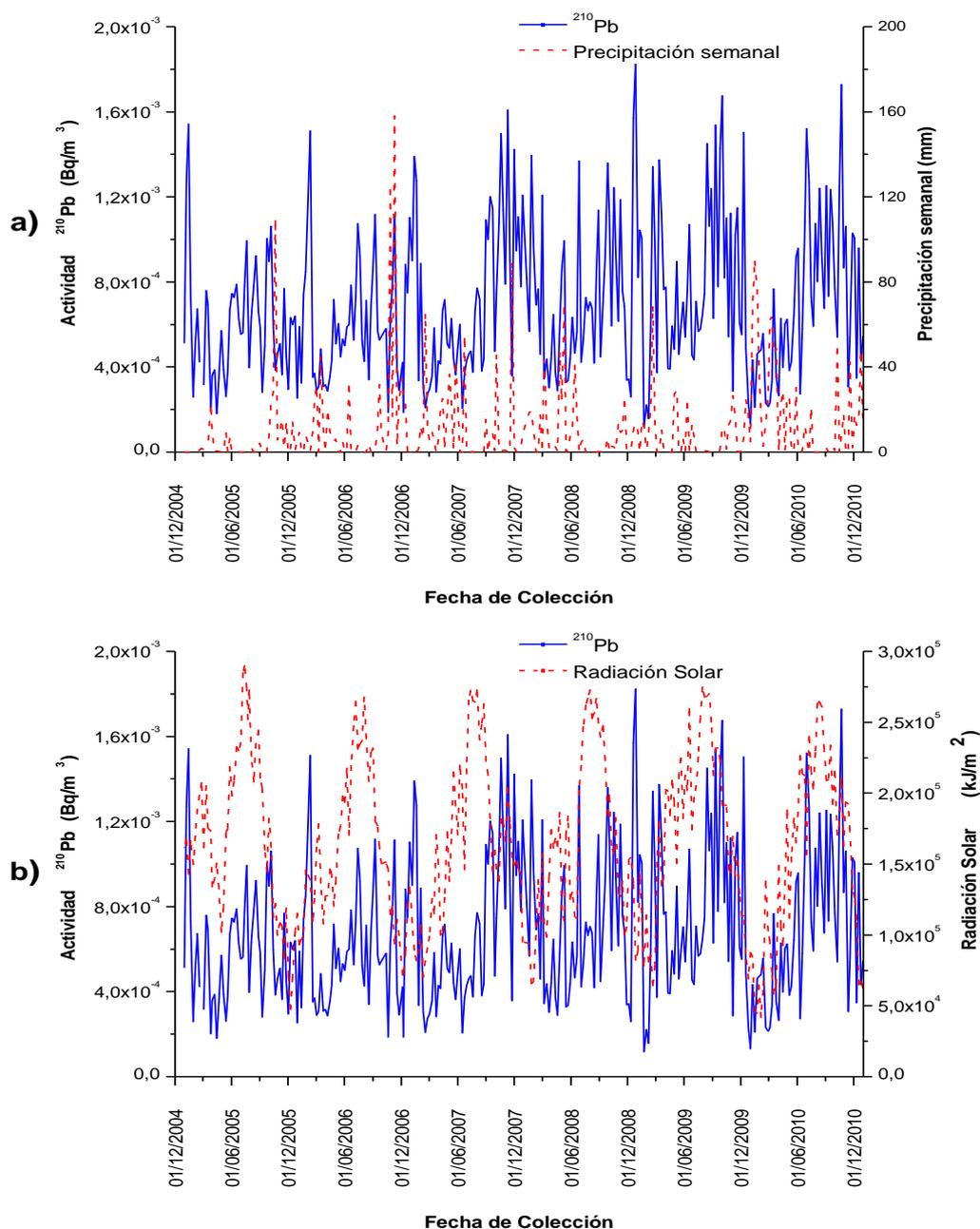


Figura 4.7. Comparación entre la evolución temporal de los niveles de actividad de  $^{40}\text{K}$  en la atmósfera de Cáceres a nivel superficial con: a) la precipitación registrada semanalmente (mm) y b) la radiación solar total semanal ( $\text{kJ}/\text{m}^2$ ).



**Figura 4.8. Comparación entre la evolución temporal de los niveles de actividad de  $^{210}\text{Pb}$  en la atmósfera de Cáceres a nivel superficial con: a) la precipitación registrada semanalmente (mm) y b) la radiación solar total semanal (kJ/m<sup>2</sup>).**

En este sentido, aún cuando no se ha detectado para ninguno de estos dos radionucleidos, ninguna correlación estadísticamente significativa con estas

variables, se ha realizado el ajuste de dichos niveles al modelo de regresión lineal múltiple expuesto en la ecuación 3.15.

Análogamente al  ${}^7\text{Be}$  y  ${}^{22}\text{Na}$ , se ha realizado el correspondiente ajuste representando los valores de  $A(t+\Delta t)-A(t)$  con respecto a las variables  $R(t)$ ,  $P(t)\cdot A(t)$  y  $A(t)$ . De este análisis obtuvieron los valores de las constantes  $k_1$ ,  $k_2$  y  $k_3$ , es decir, las componentes de incorporación y eliminación del  ${}^{40}\text{K}$  y  ${}^{210}\text{Pb}$  en la atmósfera de Cáceres debido a la radiación solar, la precipitación semanal y, el decaimiento radiactivo y la deposición seca ( $k_3$ ), respectivamente. En la tabla 4.10 se exponen los resultados de los coeficientes y estadísticos para dicho ajuste.

	<b><math>{}^{40}\text{K}</math></b>		<b><math>{}^{210}\text{Pb}</math></b>	
	<b>Coefficiente <math>\pm</math> error</b>	<b>Nivel de significación</b>	<b>Coefficiente <math>\pm</math> error</b>	<b>Nivel de significación</b>
<b><math>k_1</math></b>	$(1,01\pm 0,14)\cdot 10^{-10}$	$3,86\cdot 10^{-12}$	$(2,14\pm 0,22)\cdot 10^{-9}$	0
<b><math>k_2</math></b>	$(4,31\pm 2,50)\cdot 10^{-3}$	$8,65\cdot 10^{-2}$	$(1,72\pm 1,33)\cdot 10^{-3}$	$1,95\cdot 10^{-1}$
<b><math>1-k_3</math></b>	$(4,58\pm 0,71)\cdot 10^{-1}$	$1,09\cdot 10^{-9}$	$(4,35\pm 0,53)\cdot 10^{-1}$	$4,44\cdot 10^{-15}$
<b><math>R^2:0,816</math></b>		<b><math>R^2:0,811</math></b>		

**Tabla 4.10. Coeficientes y estadísticos de la regresión lineal múltiple (ecuación 3.15) para los niveles de actividad de  ${}^{40}\text{K}$  y  ${}^{210}\text{Pb}$ , en la atmósfera de Cáceres.**

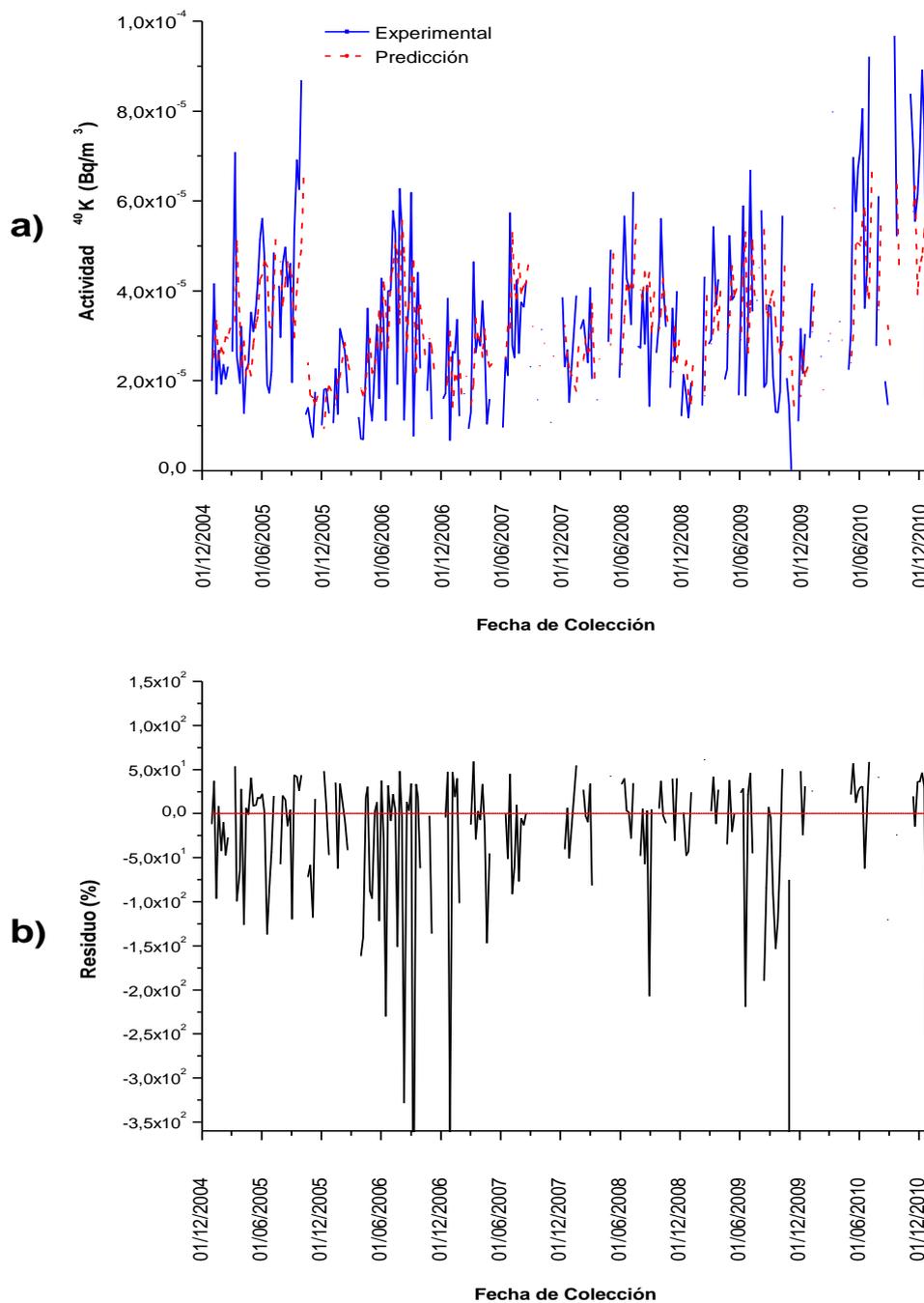
A partir de la tabla anterior, se observa que los coeficientes  $k_1$  (radiación solar) y  $k_3$  (decaimiento radiactivo) son estadísticamente significativos para un nivel de confianza superior al 99,9 % tanto para el ajuste realizado para los niveles de actividad del  ${}^{40}\text{K}$ , como para el del  ${}^{210}\text{Pb}$ . Por otro parte, el coeficiente  $k_1$  indica que la incorporación de  ${}^{40}\text{K}$  y  ${}^{210}\text{Pb}$  en el aire superficial debido a sus movimientos verticales, por el calentamiento de la tierra y que favorecen la resuspensión desde el suelo de los mismos, es de  $(1,01\pm 0,14)\cdot 10^{-10}$  Bq/m<sup>3</sup> y  $(2,14\pm 0,22)\cdot 10^{-9}$  Bq/m<sup>3</sup> por cada kJ/m<sup>2</sup> de radiación solar total semanal, respectivamente; siendo 10<sup>1</sup> veces mayor para el  ${}^{210}\text{Pb}$  que para el  ${}^{40}\text{K}$ , como se pone de manifiesto en los niveles de concentración detectados para ambos. Sin embargo, el coeficiente  $k_2$  (efecto de limpieza y deposición húmeda debido a la precipitación), presenta un nivel de

significación, en el peor de los casos (ajuste para el  $^{210}\text{Pb}$ ) no superior al 81 %. En este sentido, una posible causa de ese descenso en el nivel de significación con respecto al resto de los coeficientes del ajuste, puede ser el hecho de que la variable que realmente condiciona la presencia de estos radionucleidos en la atmósfera no sea la aquí utilizadas sino otra relacionada con éstas y que determina mejor la evolución temporal de las características del suelo del entorno, tal como su humedad relativa que no ha sido registrada en este estudio.

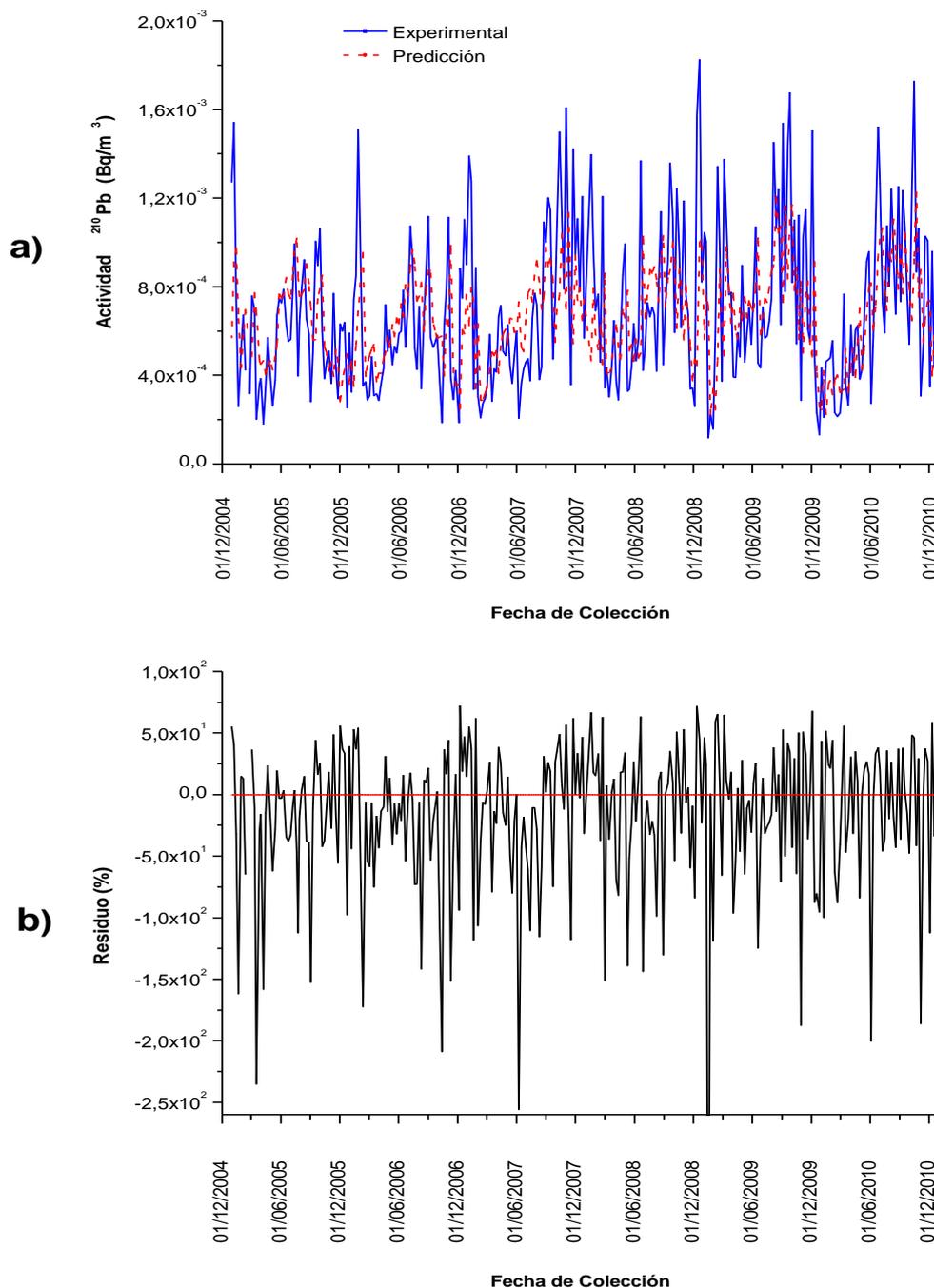
Por su parte, el coeficiente  $k_2$ , que indica la deposición húmeda de ambos radionucleidos hacia el suelo, como consecuencia del efecto de limpieza que ejerce la lluvia sobre la atmósfera del entorno estudiado, es muy similar,  $(4,31 \pm 2,50) \cdot 10^{-3}$  Bq/m<sup>3</sup> y  $(1,72 \pm 1,33) \cdot 10^{-3}$  Bq/m<sup>3</sup> por cada mm de lluvia producida y por cada Bq/m<sup>3</sup> de  $^{40}\text{K}$  y  $^{210}\text{Pb}$  presente en la misma, respectivamente. Esto indica que la eficacia de su retirada es muy análoga y por lo tanto, que presumiblemente están asociados a aerosoles de similar tamaño.

Igualmente, a partir del valor obtenido para el coeficiente  $k_3$  se ha calculado el tiempo de residencia para  $^{40}\text{K}$  y  $^{210}\text{Pb}$  en la atmósfera, debido única y exclusivamente a la deposición seca y al decaimiento radiactivo mediante la ecuación 3.16. Así, el tiempo de residencia para el  $^{40}\text{K}$  en la atmósfera de Cáceres es de  $8,9 \pm 1,4$  días. Asimismo, el tiempo de residencia calculado para el  $^{210}\text{Pb}$  en la atmósfera de Cáceres es de  $8,6 \pm 1,0$  días; resultados que coinciden significativamente con los aportados por otros autores (Papastefanou et al., 1995; Baskaran et al., 2001). Consecuencia de la similitud en los tiempos de residencia de ambos, y puesto que se liberan del suelo y resuspenden por los mismos mecanismos, se puede deducir que éstos estarán asociados a granos resuspendibles del mismo tamaño.

Por último, en la figura 4.9.a y 4.10.a, se muestran la evoluciones temporales de los niveles de actividad de  $^{40}\text{K}$  y  $^{210}\text{Pb}$  obtenidos experimentalmente en la atmósfera de Cáceres y los que se obtienen haciendo uso de la ecuación 3.15, utilizando para ello los coeficientes  $k_1$ ,  $k_2$  y  $k_3$  resultantes del ajuste a dichos niveles de actividad experimentales del  $^{40}\text{K}$  y  $^{210}\text{Pb}$ .



**Figura 4.9. Comparación entre la evolución temporal de: a) los niveles de actividad en la atmósfera de Cáceres a nivel superficial del  $^{40}\text{K}$  y los predichos por el modelo, b) los residuos entre ambos conjuntos de actividades.**



**Figura 4.10. a) Comparación entre la evolución temporal de: a) los niveles de actividad en la atmósfera de Cáceres a nivel superficial del  $^{210}\text{Pb}$  y los predichos por el modelo, b) los residuos entre ambos conjuntos de actividades.**

A partir de estas gráficas, se puede observar que aunque existe un considerable grado de concordancia entre los niveles de actividad experimentales y los predichos para dichos radionucleidos; la causa de esa carencia de correlación significativa con cada una de las variables meteorológicas estudiadas y, la posible influencia de la humedad relativa del suelo de su entorno, hace que este modelo justifique un menor porcentaje de la varianza (un 9-10% menos) de las actividades experimentales detectadas, que para el caso de  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$ .

Además, en las figuras 4.9.b y 4.10.b, se representa la evolución temporal de los errores relativos de los residuos  $\left( \frac{A_{\text{experimental}} - A_{\text{modelo}}}{A_{\text{experimental}}} \right) \cdot 100$  para ambos radionucleidos. A simple vista, se observa que al menos para el  $^{210}\text{Pb}$  pudiera existir una evolución temporal de estos residuos, con una periodicidad básicamente anual; sin embargo, del análisis de su periodograma no se obtiene una frecuencia dominante para dicha periodicidad.

Por otro lado, en las figuras 4.9.b y 4.10.b se observan una serie de diferencias relativas muy elevadas, en los que el modelo predice una actividad muy superior a la detectada experimentalmente; probablemente debido a otras variables realmente más significativas que no se han tenido en cuenta, como las características del suelo del entorno mismo o la humedad relativa del suelo.

No obstante, y a la vista de los resultados obtenidos, este modelo puede considerarse de una gran utilidad para predecir a priori, el comportamiento que tendría la aparición de dichos radionucleidos en el ecosistema estudiado.

Por último, en el caso del  $^{137}\text{Cs}$  (radionucleido artificial), no se ha logrado ajustar los niveles de actividad del mismo a ningún modelo de regresión múltiple que explique la evolución temporal de éste en el aire superficial de Cáceres. Este hecho es debido fundamentalmente al escaso número de muestras recolectadas con frecuencia semanal (el 24,4% de todas las analizadas) en las que se ha detectado una actividad específica neta del mismo.

#### **4.5.2.- Capacidad predictiva del comportamiento normal del contenido de $^{40}\text{K}$ , $^{210}\text{Pb}$ y $^{137}\text{Cs}$ en la atmósfera de Cáceres:**

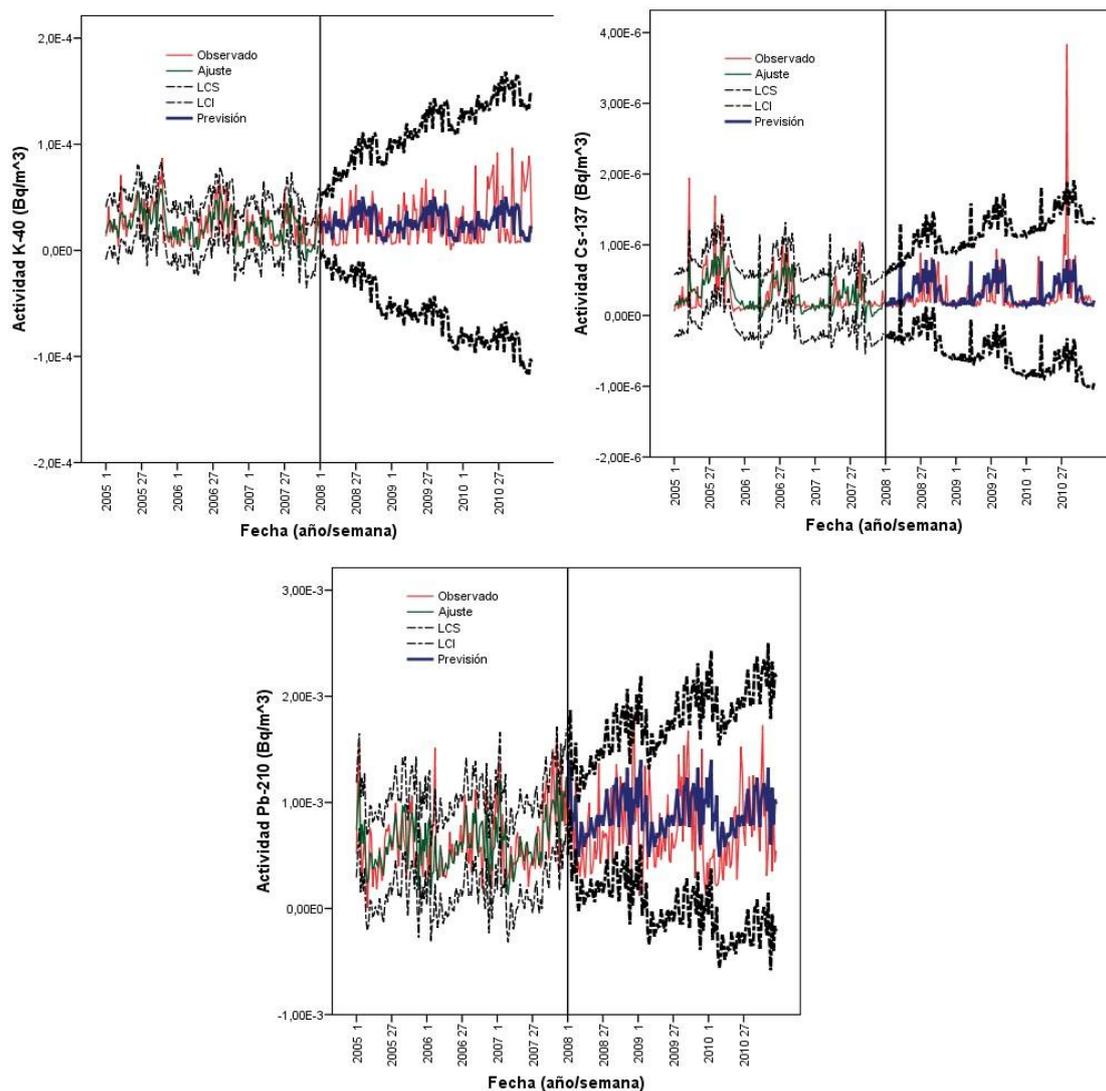
Análogamente al caso del  $^7\text{Be}$  y  $^{22}\text{Na}$ , se ha realizado el análisis de las series temporales para los radionucleidos que nos ocupan en este capítulo, y se han ajustado al modelo estacional simple detallado en el capítulo 3 de la presente memoria.

Así, los resultados que se obtienen para estos tres radionucleidos se muestran en la tabla 4.11.

	<b>R<sup>2</sup></b>	<b>RMSE</b>	<b>MAPE</b>	<b>MAE</b>	<b>Error relativo promedio (%) (periodo de predicción)</b>
<b><math>^{40}\text{K}</math></b>	0,739	$1,25 \cdot 10^{-5}$	81	$9,60 \cdot 10^{-6}$	120
<b><math>^{210}\text{Pb}</math></b>	0,714	$2,00 \cdot 10^{-4}$	84	$2,00 \cdot 10^{-4}$	76
<b><math>^{137}\text{Cs}</math></b>	0,800	$2,21 \cdot 10^{-7}$	72	$1,47 \cdot 10^{-7}$	37

**Tabla 4.11. Datos de la bondad del ajuste del modelo estacional simple obtenido para el  $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{137}\text{Cs}$  (periodo de ajuste: 2005 a 2007) y el error relativo promedio para el periodo de predicción (2008 a 2010).**

En la figura 4.11, se muestran los valores observados (experimentales), el ajuste realizado por el modelo, los intervalos de confianza superior e inferior del ajuste con un 95 % de probabilidad y, las predicciones que dicho modelo ejecuta para cada uno de los radionucleidos estudiados.



**Figura 4.11. Datos observados (experimentales), ajustados por el modelo, predichos y límites superior e inferior del ajuste al 95 % de probabilidad.**

Como se puede observar, todos los modelos explican más del 71 % (en el peor de los casos, para el  $^{210}\text{Pb}$ ) de la varianza de los niveles de actividad de los radionucleidos estudiados, reproduciendo satisfactoriamente las evoluciones temporales de los mismos.

Por ello, se puede concluir que los modelos estacionales simples generados, se pueden utilizar a priori para detectar posibles incidencias sobre las evoluciones temporales calificables de normales en los niveles de actividad detectados para esos radionucleidos. A modo de ejemplo, nótese cómo en la gráfica 4.11, se observa que hay un valor experimental para el  $^{137}\text{Cs}$  muy elevado con respecto al valor predicho

por el modelo y que éste se corresponde con la actividad registrada en la semana 29 del año 2010, consecuencia de un gran incendio que se produjo en el país vecino de Portugal y, que conllevó una gran presencia de humo en el cielo de Cáceres y, por tanto un aumento en la concentración del mismo en la misma.

#### **4.6.- Estimación de la dosis efectiva por inhalación:**

En los apartados anteriores se ha determinado la concentración de los radionucleidos presentes en la atmósfera de Cáceres, que normalmente se encuentra exenta de un término fuente de radionucleidos artificiales. Usando estos valores se puede determinar el impacto radiológico a la población en general, a partir de la estimación de la dosis efectiva por inhalación, mediante la siguiente expresión:

$$D(\text{Sv/año}) = \sum_i e_i(\text{Sv/Bq}) \cdot A_i(\text{Bq/m}^3) \cdot V(\text{m}^3/\text{año}) \quad (4.7)$$

donde D es la dosis efectiva total por inhalación, expresada en Sv/año;  $e_i$  es el factor de conversión actividad dosis para el radionucleido i (ICRP, 2012) expresado en Sv/Bq;  $A_i$  es el nivel de actividad del radionucleido i, expresado en Bq/m<sup>3</sup>; y V es el volumen respirado anual, 2.9 m<sup>3</sup>/día para lactantes de 3 meses de edad y 22 m<sup>3</sup>/día para adultos (ICRP, 2012).

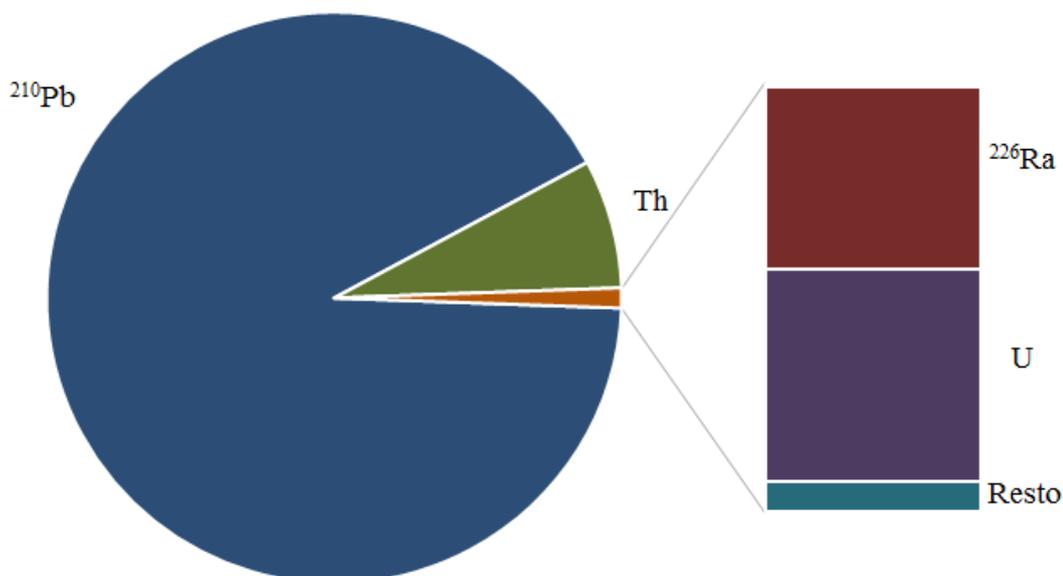
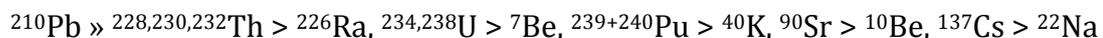
El cálculo de la dosis por inhalación se ha hecho de una forma conservativa, escogiendo el mayor coeficiente  $e_i$  de entre las distintas formas de adsorción que define el ICRP (fast, moderate y slow) (ICRP, 2012). En la tabla 4.12 se muestran los coeficientes  $e_i$  usados para los grupos de edad lactantes (< 3 meses) y adultos, el valor medio y la desviación estándar de los niveles de actividad detectados y la dosis efectiva debida a cada radionucleido.

Radion.	e (Sv/Bq)		V.M. ± S.D. (Bq/m <sup>3</sup> )	D (Sv/año)	
	Lactantes	Adultos		Lactantes	Adultos
<sup>7</sup> Be	2.8·10 <sup>-10</sup>	5·10 <sup>-11</sup>	(5.9±2.3)·10 <sup>-3</sup>	(1.8±0.7)·10 <sup>-9</sup>	(2.4±0.9)·10 <sup>-9</sup>
<sup>10</sup> Be	9.9·10 <sup>-8</sup>	3.5·10 <sup>-8</sup>	(4.2±2.2)·10 <sup>-7</sup>	(4.4±2.3)·10 <sup>-11</sup>	(1.2±6)·10 <sup>-10</sup>
<sup>22</sup> Na	9.70·10 <sup>-9</sup>	1.3·10 <sup>-9</sup>	(7.9±3.5)·10 <sup>-7</sup>	(8.1±3.6)·10 <sup>-12</sup>	(8.2±3.6)·10 <sup>-12</sup>
<sup>40</sup> K	2.40·10 <sup>-8</sup>	2.1·10 <sup>-9</sup>	(3.3±1.8)·10 <sup>-5</sup>	(0.8±0.5)·10 <sup>-10</sup>	(5±3)·10 <sup>-10</sup>
<sup>90</sup> Sr	4.2·10 <sup>-7</sup>	1.6·10 <sup>-7</sup>	(3.4±4.4)·10 <sup>-7</sup>	(1.5±1.9)·10 <sup>-10</sup>	(4±6)·10 <sup>-10</sup>
<sup>137</sup> Cs	1.1·10 <sup>-7</sup>	3.9·10 <sup>-8</sup>	(6.3±4.5)·10 <sup>-7</sup>	(7±5)·10 <sup>-11</sup>	(2.0±1.4)·10 <sup>-10</sup>
<sup>210</sup> Pb	1.8·10 <sup>-5</sup>	5.6·10 <sup>-8</sup>	(6.9±3.4)·10 <sup>-4</sup>	(1.3±0.7)·10 <sup>-5</sup>	(3.1±1.6)·10 <sup>-5</sup>
<sup>226</sup> Ra	3.4·10 <sup>-5</sup>	9.5·10 <sup>-6</sup>	(2.1±0.8)·10 <sup>-6</sup>	(7.6±2.8)·10 <sup>-8</sup>	(1.6±0.6)·10 <sup>-7</sup>
<sup>228</sup> Th	1.8·10 <sup>-4</sup>	4·10 <sup>-5</sup>	(1.4±0.7)·10 <sup>-6</sup>	(2.6±1.4)·10 <sup>-7</sup>	(4.4±2.4)·10 <sup>-7</sup>
<sup>230</sup> Th	2.10·10 <sup>-4</sup>	10 <sup>-4</sup>	(1.4±0.8)·10 <sup>-6</sup>	(3.2±1.9)·10 <sup>-7</sup>	(1.2±0.7)·10 <sup>-6</sup>
<sup>232</sup> Th	2.3·10 <sup>-4</sup>	1.1·10 <sup>-4</sup>	(1.0±0.5)·10 <sup>-6</sup>	(2.4±1.3)·10 <sup>-7</sup>	(9±5)·10 <sup>-7</sup>
<sup>234</sup> U	3.3·10 <sup>-5</sup>	9.4·10 <sup>-5</sup>	(1.4±0.6)·10 <sup>-6</sup>	(4.2±1.8)·10 <sup>-8</sup>	(1.0±0.4)·10 <sup>-7</sup>
<sup>238</sup> U	2.9·10 <sup>-5</sup>	8·10 <sup>-6</sup>	(1.4±0.6)·10 <sup>-6</sup>	(1.2±1.8)·10 <sup>-8</sup>	(9±4)·10 <sup>-8</sup>
<sup>239+240</sup> Pu	2.1·10 <sup>-4</sup>	1.2·10 <sup>-4</sup>	(2.8±0.2)·10 <sup>-8</sup>	(6.1±0.4)·10 <sup>-9</sup>	(2.7±0.2)·10 <sup>-8</sup>

**Tabla 4.12. Coeficientes de conversión actividad-dosis, e, expresados en Sv/Bq (ICRP, 2012) correspondientes a los grupos de edad menor de 3 meses (lactantes) y adultos para los distintos radionucleidos analizados; valor medio y desviación estándar de los niveles de actividad de cada radionucleido, expresado en Bq/m<sup>3</sup>; y dosis por inhalación, expresada en Sv/año, debida a cada uno de los radionucleidos analizados y grupo de edad considerado.**

La dosis efectiva total, sumando todas las contribuciones de los radionucleidos analizados es de (14 ± 7) μSv/año y (34 ± 15) μSv/año para los grupos de lactantes y adultos, respectivamente. En la figura 4.12, se muestra a modo de ejemplo la contribución de cada uno de los radionucleidos a la dosis efectiva total para el grupo de edad adulto, observándose que el <sup>210</sup>Pb es el que ocasiona la mayor dosis efectiva, aproximadamente el 92%, seguido por los distintos radionucleidos de torio, que

suman un 5.8 – 7.3 %, decreciendo la contribución del resto de radionucleidos en el siguiente orden:



**Figura 4.12. Contribución de cada uno de los radionucleidos analizados a la dosis efectiva total por inhalación para el grupo de edad adulto.**

Se puede realizar una estimación más conservadora de la dosis efectiva total tomando los valores máximos detectados en vez de los valores medios, obteniendo de este modo 37 y 88  $\mu\text{Sv/año}$  para lactantes y adultos respectivamente. Como se puede observar, esta dosis efectiva está muy lejos del valor de referencia de 1 mSv/año para la exposición del público en general a la radiación ionizante (CE, 1996), aun cuando en dicho criterio se especifica claramente que para su cómputo se excluye el fondo radiactivo ambiental, del cual todos los radionucleidos con los que hemos calculado la dosis por inhalación pertenecen para el entorno de Cáceres capital.

Otro radionucleido que hay que tener muy en cuenta en el cálculo de la dosis interna es el  $^{210}\text{Po}$ , que en nuestro caso y dada la sistemática de recolección y análisis de las muestras de aerosoles, no se ha podido determinar de una forma directa. Sin embargo, se puede realizar una estimación de su contribución a la dosis efectiva por inhalación haciendo uso de los cocientes  $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  registrados en la literatura,

encontrándose en el rango (0.042 – 0.369) y (0.01 – 0.137) para España y Polonia respectivamente (Camacho et al., 2009; Długosz et al., 2010). De nuevo se considera un criterio conservador, usando el valor máximo de estos rangos, 0.396, y el valor máximo de  $^{210}\text{Pb}$ ,  $1.8 \cdot 10^{-3} \text{ Bq/m}^3$ , siendo el valor máximo estimado de  $^{210}\text{Po}$  de  $6.7 \cdot 10^{-4} \text{ Bq/m}^3$ . El coeficiente de conversión actividad-dosis para el  $^{210}\text{Po}$  es  $1.8 \cdot 10^{-5}$  y  $4.3 \cdot 10^{-6} \text{ Sv/Bq}$  para los grupos de edad menor de 3 meses y adulto respectivamente. La dosis estimada debida al  $^{210}\text{Po}$  es de 13 y 23  $\mu\text{Sv/año}$  respectivamente para ambos grupos de edad. De forma que la dosis efectiva por inhalación, incluyendo el  $^{210}\text{Po}$ , en el caso más desfavorable sería de 50 y 110  $\mu\text{Sv/año}$  para ambos grupos de edad, siendo estos valores menores que el criterio de 1 mSv/año para el público en general.

En cualquier caso, sirva para reafirmar de nuevo la capacidad analítica del método utilizado: la conjunción de una bomba de aspiración de alto flujo y la espectrometría gamma y alfa, según el caso.

#### **4.7.- Conclusiones:**

Una vez realizado el análisis, la modelización y la estimación de la dosis efectiva por inhalación de los radionucleidos de origen primordiales y antropogénicos en la atmósfera de Cáceres, procedemos a detallar los principales resultados y conclusiones obtenidos.

1. La composición del contenido radiactivo de los aerosoles en un emplazamiento exento de término fuente, como el propuesto de Cáceres, decrece en el siguiente orden:

$^7\text{Be} > ^{210}\text{Pb} \gg ^{40}\text{K} > ^{226}\text{Ra}, ^{228,230,232}\text{Th}, ^{234,238}\text{U} > ^{10}\text{Be}, ^{22}\text{Na}, ^{137}\text{Cs}, ^{90}\text{Sr} > ^{239+240}\text{Pu} > ^{241}\text{Am}$

2. Las concentraciones de  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{40}\text{K}$  presentan variaciones anuales, no existiendo correlación estadísticamente significativa con las variables meteorológicas sistemáticamente utilizadas.

3. La concentración de emisores  $^{234,238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  y  $^{228,230,232}\text{Th}$  presenta valores ligeramente superiores en los meses primavera y verano, encontrándose una correlación lineal con la radiación solar y la temperatura, considerándose la primera de ellas como una consecuencia de la correlación con la temperatura, ya que el origen de estos radionucleidos no es cosmogénico, sino primordial.

4. La presencia de radionucleidos artificiales, en particular de  $^{137}\text{Cs}$ , presenta una variación anual, con máximos en los meses de verano. La existencia de humo, como

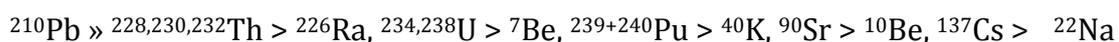
consecuencia de incendios forestales, puede llegar a aumentar los valores de este radionucleido en los aerosoles. Las concentraciones de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{90}\text{Sr}$  se encuentran relacionadas con la temperatura y la radiación solar. Los niveles de actividad de  $^{239+240}\text{Pu}$  son los que presentan un menor orden de magnitud, mientras que en el caso del  $^{241}\text{Am}$ , todas las muestras analizadas dieron límite de detección.

5. Se ha cuantificado la influencia de las principales componentes que rigen la dinámica de  $^{40}\text{K}$  y  $^{210}\text{Pb}$  en dicha atmósfera, es decir: la radiación solar, la precipitación y el decaimiento radiactivo y la deposición seca, desarrollando para ello un modelo de regresión lineal múltiple. El coeficiente de incorporación para el  $^{210}\text{Pb}$  es un orden de magnitud superior al del  $^{40}\text{K}$ , como se pone de manifiesto en los niveles de actividad detectados para ambos. Por otro lado, los coeficientes de eliminación de éstos de la atmósfera de Cáceres, es decir, tanto el efecto de limpieza de la precipitación como la deposición seca son muy similares para ambos; por lo que éstos deben asociarse a partículas de aerosoles de tamaño similar.

6. A partir del término de deposición seca y del decaimiento radiactivo ( $k_3$ ), se ha calculado el tiempo de residencia del  $^{40}\text{K}$  y  $^{210}\text{Pb}$  en la atmósfera debido a estos dos factores, siendo de 8,9 y 8,6 días, respectivamente.

7. A través del análisis de series temporales, se han ajustado las actividades detectadas de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{137}\text{Cs}$ , para los años 2005 a 2007, a un modelo estacional simple; y se han predicho, para los años 2008 a 2010, las actividades de estos radionucleidos, con unos errores relativos promedios de 120, 76 y 37 %, respectivamente. Aun cuando estos errores relativos son mayores que para el caso de los radionucleidos cosmogénicos estudiados anteriormente, estos modelos se pueden utilizar a priori para detectar posibles incidencias sobre las evoluciones temporales calificables de normales en los niveles de actividad detectados para estos radionucleidos; como ocurrió por ejemplo, para el nivel de actividad anómalo de  $^{137}\text{Cs}$  detectado en la semana 29 del año 2010, consecuencia de un gran incendio que se produjo en el país vecino de Portugal.

8. La contribución de los radionucleidos analizados a la dosis efectiva total decrece en el siguiente orden:



9. La dosis efectiva por inhalación de aerosoles debida a los radionucleidos analizados, con un valor máximo de 37  $\mu\text{Sv/año}$  y 88  $\mu\text{Sv/año}$  para el grupo de edad lactante y adulto, respectivamente, no supone un riesgo radiológico, al ser este nivel

muy inferior al valor de referencia de 1mSv/año para el público en general, aun cuando oficialmente el fondo radiactivo ambiental no computa para establecer dicho nivel de referencia de dosis anual.



## **Capítulo 5**

# **APLICACIÓN: ANÁLISIS DEL IMPACTO EN LA ATMÓSFERA DE CÁCERES DEL ACCIDENTE DE LA CENTRAL NUCLEAR DE FUKUSHIMA**

En el presente capítulo se pretende demostrar la sensibilidad que poseen las determinaciones del contenido radiactivo efectuadas sobre muestras de aerosoles recolectadas con el captador de aerosoles de alto flujo que dispone el LARUEX, el cual forma parte de la Red Espaciada de Vigilancia Radiológica Ambiental del CSN, ante una situación de contaminación radiactiva atmosférica real.

La alta sensibilidad que con su uso se obtiene, es consecuencia del elevado volumen de muestra que colecta este captador (unos 500 m<sup>3</sup>/h); lo cual posibilita que las determinaciones de las concentraciones radiactivas en los aerosoles posean límites de detección extremadamente bajos. Todo ello funcionando en condiciones normales, es decir, de forma ininterrumpida durante todo el año, colectando a razón de una muestra de aerosoles por semana.

Un test real para la citada enorme sensibilidad que se posee en el LARUEX para la detección de mínimas alteraciones de las concentraciones de radionucleidos artificiales en la atmósfera de Cáceres, se ha puesto de manifiesto a través de la detección de la presencia de actividades netas para algunos de los siguientes radionucleidos (<sup>134</sup>Cs, <sup>136</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>131</sup>I, <sup>132</sup>I y <sup>132</sup>Te) en dicha atmósfera, como consecuencia de la llegada a la misma de restos de las nubes radiactivas originadas por las evacuaciones gaseosas producidas tras el accidente que tuvo lugar en la central nuclear de Fukushima Dai-ichi, en Marzo de 2011.

Es por ello, que el objetivo de este capítulo es el de realizar un análisis del impacto que tuvo el citado accidente de la central nuclear de Fukushima en la atmósfera de Cáceres.

### **5.1.- Introducción:**

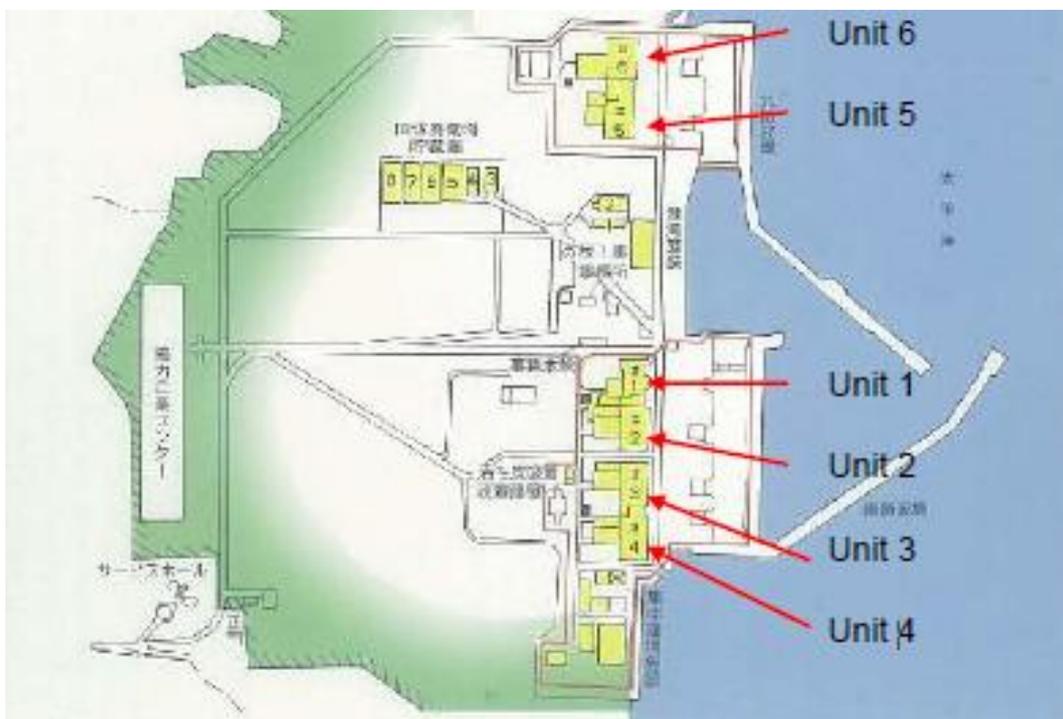
El accidente de la central nuclear de Fukushima Dai-ichi ha sido el que ha tenido una mayor repercusión mundial, después de que en 1986 se produjera el accidente de la central nuclear de Chernobyl.

El 11 de marzo de 2011 se originó un terremoto, con una intensidad de 9 grados en la escala Richter, en el Océano Pacífico a 130 km de la costa este de Honchu en Japón, que provocó un tsunami que posteriormente impactaría contra la costa.

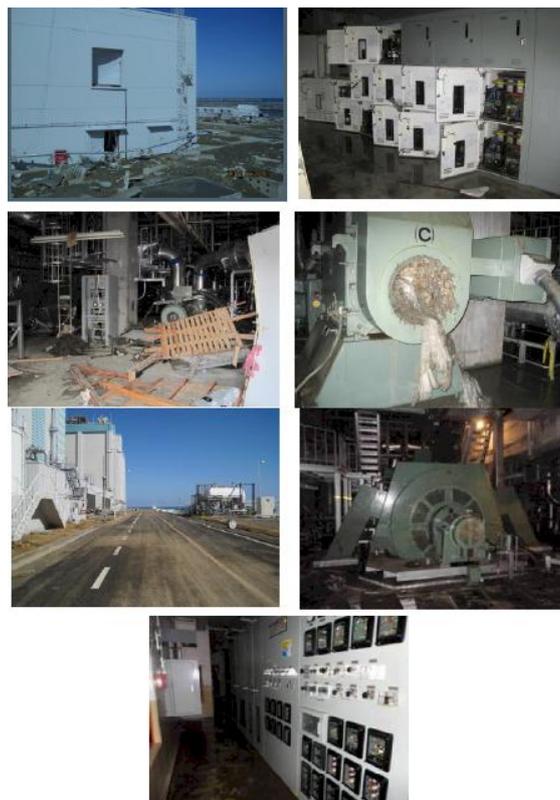
En Japón, existen 55 reactores en sus centrales nucleares operativas, situadas la mayoría de ellas muy próximas a sus costas. Algunas de estas plantas, como la central nuclear de Fukushima Dai-ichi, se vieron afectadas por el

terremoto y el posterior tsunami, causando importantes daños en los sistemas de refrigeración (figura 5.1 y figura 5.2), lo que motivó que durante los días posteriores al accidente, se produjera un importante aumento de la temperatura en estos reactores, que provocaron diversas explosiones, con la liberación de una importante cantidad de material radiactivo a la atmósfera.

La actividad total de radioyodos y radiocesios liberada a la atmósfera tras el accidente de la central nuclear de Fukushima se ha estimado en unos  $2 \cdot 10^{17}$  y  $3.5 \cdot 10^{16}$  Bq totales para  $^{131}\text{I}$  y  $^{137}\text{Cs}$  respectivamente, que equivalen aproximadamente a un 6% y un 42% de la actividad total que se liberó al medioambiente tras el accidente de la central nuclear de Chernobyl (IRSN, 2011a y Sthol et al., 2012).



**Figura 5.1. Esquema general de la Central Nuclear de Fukushima Dai-ichi.**



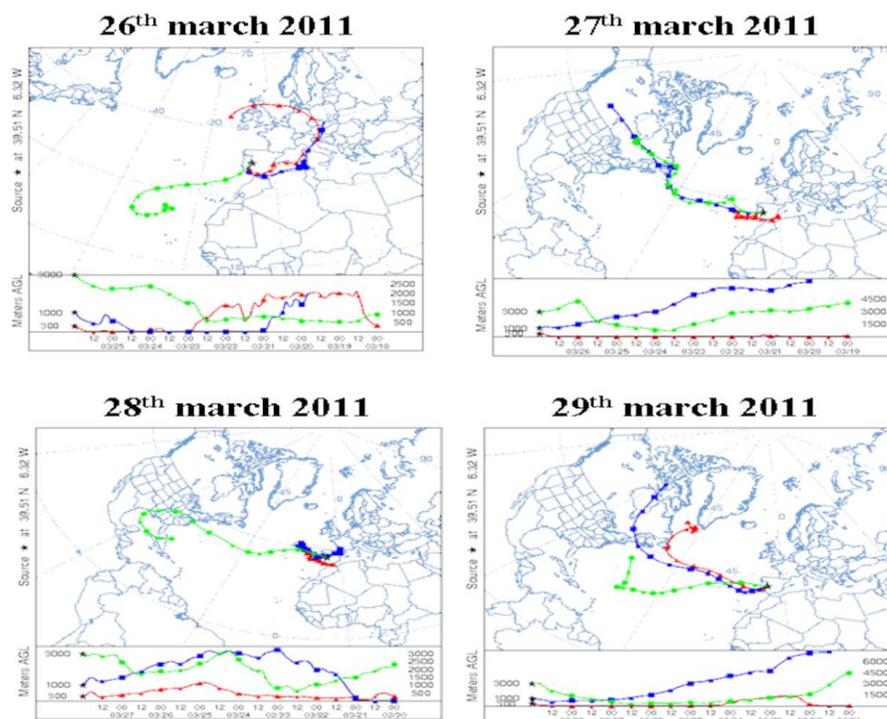
**Figura 5.2. Algunos de los daños producidos en la Central Nuclear de Fukushima Dai-ichi debido al tsunami.**

Estos radioyodos y radiocesios emitidos a la atmósfera se incorporaron rápidamente a los aerosoles atmosféricos y, posteriormente fueron parcialmente transportados a través del Océano Pacífico hasta América del Norte y, a pesar de la dispersión experimentada por las masas de aire contaminado durante dicho trayecto y del lavado de estas masas de aire contaminado en la atmósfera por efecto de la lluvia, finalmente, restos de las mismas impactaron sobre Europa. Como consecuencia de dicho transporte, el 21 de marzo de 2011 una de las estaciones de la red de vigilancia CTBTO ubicada en Islandia, fue la primera en detectar la presencia de alteraciones radiactivas de  $^{131}\text{I}$  en los aerosoles sobre Europa, con una concentración en el aire de  $0,010 \text{ mBq/m}^3$  (ZAMG, 2011). Posteriormente, el Instituto de Radioprotección y Seguridad Nuclear de Francia, IRSN, informó el 24 de marzo de 2011 de la presencia de  $^{131}\text{I}$  en aire, en concentraciones de  $0,012 \text{ mBq/m}^3$ , en una de sus estaciones de vigilancia radiológica (IRSN, 2011b).

En España, las emisiones procedentes de la central nuclear de Fukushima se detectaron, en primer lugar, en la atmósfera de Cáceres, en el filtro de partículas que estuvo recolectando aerosoles, con su frecuencia estándar de una semana,

entre las fechas comprendidas entre el 15 y el 22 de Marzo. Durante los días siguientes y como consecuencia del progresivo avance de los restos de la citada nube radiactiva, también se detectaron estas anomalías radiológicas en otras estaciones de la Red de Estaciones de Medida, REM, del CSN en España.

Para entender los mecanismos que gobernaron la llegada y dispersión de la nube radiactiva hacia la Península Ibérica, investigadores del Instituto de Técnicas Energéticas de Barcelona (INTE) han realizado una simulación de las retro-trayectorias de los vientos dominantes en el periodo comprendido entre el 26 y 29 de Marzo de 2011 (figura 5.3.) (Baeza et al., 2012). Para conseguir información del movimiento de las masas de aire en la capas más bajas y elevadas de la atmósfera, los cálculos se han realizado a tres altitudes sobre el nivel del mar a 300, 1000 y 3000 m. En la figura se observa cómo, entre las fechas del 27 al 29 de Marzo de 2011, los vientos (para las diferentes altitudes de masas de aire simuladas) procedentes de América del Norte, hacen su inclusión a través del océano Atlántico en la Península Ibérica, por el vecino país de Portugal; conclusión a la que también llegan otros autores que han realizado estudios sobre las rutas de transporte de la pluma radiactiva de Fukushima hacia la Península Ibérica (Hernández-Ceballos et al., 2013). Este hecho justifica, por una parte, que fuese en la estación de Vigilancia Radiológica Ambiental de Cáceres donde se detectará en primer lugar, en España, las emisiones procedentes del accidente nuclear de Fukushima y, por otra parte, que durante esas fechas fueran los momentos en los que la atmósfera sobre la estación de Cáceres experimentara los mayores niveles de contaminación radiactiva, pudiéndose de hecho detectar la presencia de actividades netas para los siguientes radionucleidos:  $^{131}\text{I}$  ( $T_{1/2}$ : 8 días),  $^{134}\text{Cs}$  ( $T_{1/2}$ : 2.1 años),  $^{136}\text{Cs}$  ( $T_{1/2}$ : 13.2 días),  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2}$ : 30.1 años),  $^{132}\text{Te}$  ( $T_{1/2}$ : 3.2 días) y  $^{132}\text{I}$  ( $T_{1/2}$ : 2.3 horas).



**Figura 5.3. Retro trayectorias hasta Cáceres de los vientos dominantes del 26 a 29 de Marzo de 2011.**

### **5.2.- Alteración de la metodología de muestreo:**

Como consecuencia de dicho accidente y con el fin de realizar un estudio lo más detallado posible, de la evolución temporal que pudieran experimentarse en la concentración de los aerosoles radiactivos (por ejemplo, de la actividad del  $^{131}\text{I}$  en sus formas particulada y gaseosa), fue necesario variar la metodología habitual de muestreo. Como ya se ha comentado en este capítulo, el colector de aerosoles de alto flujo usado se encuentra funcionando de forma ininterrumpida durante todo el año, recolectando rutinariamente una muestra de polvo atmosférico por semana. Sin embargo, la temporalidad con la que fueron colectadas estas muestras se redujo drásticamente y fue variable, desde 1 semana a varias horas, en el intento de conjugar simultáneamente la obtención de actividades mínimas detectables que permitiesen cuantificar, con suficiente precisión, las alteraciones radiactivas presentes en la atmósfera, con la de alcanzar la máxima resolución temporal razonablemente posible.

Por otro lado, para determinar la concentración de  $^{131}\text{I}$  en su forma gaseosa, conjuntamente con la colección de muestras de partículas de polvo atmosférico con el captador de alto flujo, se usó una bomba de aspiración de bajo flujo, que proporciona unos volúmenes diarios en torno a  $40 \text{ m}^3$ . Esta fracción gaseosa de los

radioyodos son recolectados en filtros cilíndricos de carbón activo de 30x50 mesh impregnados con TEDA. En el caso de este colector de bajo flujo, la temporalidad de muestreo se mantuvo en 1 muestra/semana durante el tiempo que duró la incidencia provocada por el accidente nuclear de Fukushima, dado su considerable menor volumen de aspiración y consecuentemente el considerable mayor valor de la actividad mínima detectable asociado a dicho dispositivo de captación.

En la tabla 5.1 se presentan las periodicidades de muestreo para la recolección de aerosoles radiactivos y para la de la fracción gaseosa de los radioyodos en la atmósfera de Cáceres con los colectores de alto y bajo flujo, respectivamente; así como los volúmenes de dichas muestras durante el periodo en el que se detectaron concentraciones netas para los radionucleidos antes citados.

Cabe destacar que además se llevó a cabo la colección de muestras de:

- a) Tritio atmosférico, tanto en su forma oxidada (HTO y T<sub>2</sub>O) como en la reducida (HT y T<sub>2</sub>), durante el periodo comprendido entre el 9 y 28 de Marzo de 2011, con el colector de tritio activo (MARC 7000) descrito en el capítulo 2 de la presente memoria.
- b) Deposición húmeda, en el periodo comprendido entre el 28 y 29 de Marzo de 2011, mediante el colector descrito en el capítulo 2. En la única muestra de agua de lluvia habida en dicho periodo, se determinaron los contenidos de tritio y de <sup>131</sup>I.

En cuanto a la preparación de las muestras y dado que se debía informar rápidamente a las autoridades (CSN), ésta se procuró fuera lo más sencilla y rápida posible para la mayoría de los casos. Así, los filtros captados con el colector de alto flujo fueron prensados y alojados en geometrías con una superficie de 8x8 cm. Los filtros cilíndricos de carbón activo fueron alojados en geometrías para las que se disponía de calibrados en los detectores gamma.

Tipo de muestra	Fechas de colección		Volumen aspirado (m <sup>3</sup> )
	Inicial	Final	
Filtro Alto Flujo	15/03/2011	22/03/2011	95070
Filtro Alto Flujo	22/03/2011	26/03/2011	50430
Filtro Alto Flujo	26/03/2011	27/03/2011	11801
Filtro Alto Flujo	27/03/2011	27/03/2011	5771
Filtro Alto Flujo	27/03/2011	28/03/2011	10505
Filtro Alto Flujo	28/03/2011	29/03/2011	9401
Filtro Alto Flujo	29/03/2011	30/03/2011	13861
Filtro Alto Flujo	30/03/2011	31/03/2011	15092
Filtro Alto Flujo	31/03/2011	01/04/2011	15287
Filtro Alto Flujo	01/04/2011	02/04/2011	14895
Filtro Alto Flujo	02/04/2011	03/04/2011	15142
Filtro Alto Flujo	03/04/2011	05/04/2011	29294
Filtro Alto Flujo	05/04/2011	07/04/2011	27188
Filtro Alto Flujo	07/04/2011	09/04/2011	28757
Filtro Alto Flujo	09/04/2011	12/04/2011	40722
Filtro Alto Flujo	12/04/2011	19/04/2011	82247
Filtro Alto Flujo	19/04/2011	26/04/2011	95631
Filtro Alto Flujo	26/04/2011	03/05/2011	97632
Cartucho Carbón Activo	22/03/2011	29/03/2011	382,85
Cartucho Carbón Activo	29/03/2011	05/04/2011	383,64
Cartucho Carbón Activo	05/04/2011	12/04/2011	383,49

**Tabla 5.1. Periodicidad y volúmenes muestreados en Cáceres de los aerosoles radiactivos y de la fracción gaseosa de los radioyodos, respectivamente con el colector de alto y bajo flujo.**

Todas estas muestras fueron analizadas a través de espectrómetros gamma de alta resolución y bajo fondo, usando para ello detectores de germanio hiperpuros de tipo P y con unas eficiencias relativas en el rango del 30-40% y resoluciones de 1.77-1.86 keV para el fotopico del  $^{60}\text{Co}$  a 1.33 MeV.

Las muestras de tritio fueron preparadas siguiendo el procedimiento interno del LARUEX (PL-77) y medidas en el espectrómetro de centelleo líquido Quantulus 1220 de ultrabajo fondo (PL-75).

Por último, para la determinación del  $^{131}\text{I}$  en la muestra de agua de lluvia se realizó una extracción selectiva del mismo, estabilizándola con NaI y posterior precipitado como AgI (PL-05). El análisis se llevó a cabo en los espectrómetros gamma descritos con anterioridad.

### **5.3.- Impacto radiológico en los aerosoles:**

#### **5.3.1.- Aerosoles atmosféricos:**

A continuación se presentan los resultados obtenidos para las muestras analizadas y, el impacto radiológico que el accidente nuclear de Fukushima tuvo la atmósfera de Cáceres.

Como se comentó anteriormente, los primeros niveles de actividad detectados superiores a la Actividad Mínima Detectable (AMD) del método rutinariamente utilizado para el  $^{131}\text{I}_{\text{particulado}}$  liberado tras el accidente nuclear de Fukushima, se registraron en el filtro de alto flujo colectado en el periodo comprendido entre el 15 y el 22 de Marzo de 2011, prácticamente de forma simultánea a lo registrado en la mayoría de las ciudades europeas (Masson et al., 2011). Sin embargo, no fue hasta fechas posteriores a ésta, cuando se detectó la presencia del resto de radionucleidos.

Por otro lado, fue en las fechas comprendidas entre los días 27-29 de Marzo de 2011, cuando se registraron los niveles de concentración más elevados de radionucleidos, tanto en la atmósfera de Cáceres, como en otras ciudades de España (Lozano et al., 2011, Baeza et al., 2012), detectándose la presencia neta de actividades para  $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{136}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{132}\text{Te}$  y su hijo de vida corta el  $^{132}\text{I}$ .

Para entender las alteraciones radiactivas que tuvieron lugar en la atmósfera de Cáceres durante estas fechas, se ha analizado la evolución temporal de los citados radionucleidos (ver figura 5.4), correlacionando dichos valores con datos meteorológicos locales de Cáceres (tales como dirección y velocidad del

viento y precipitaciones), obtenidos de la Agencia Estatal de Meteorología (ver Anexo 1).

En la figura 5.4, puede observarse como la evolución temporal que manifiestan los radionucleidos detectados es similar para todos ellos. En la muestra recolectada entre el 15 al 22 de Marzo de 2011, comienzan a detectarse los primeros niveles de actividad superiores a las actividades mínimas detectables normalmente alcanzables con el empleo del captador de alto flujo en el LARUEX (a modo de ejemplo,  $AMD(^{131}\text{I}) \approx 1 \cdot 10^{-7} \text{ Bq/m}^3$ ). Concretamente, la causa última de la llegada a Cáceres de los restos de la nube radiactiva procedente del accidente de la central nuclear de Fukushima, es la entrada en la Península Ibérica de vientos con componente dominante oeste durante los días del 15 al 19 de Marzo.

A partir del 23 de Marzo comienzan a registrarse niveles de actividad superiores a las actividades mínimas normalmente detectables del LARUEX para los siguientes radionucleidos ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{136}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{132}\text{Te}$  y su hijo de vida corta el  $^{132}\text{I}$ ), aumentando rápidamente hasta el nivel máximo registrado el día 28 de Marzo. Este aumento en los niveles de actividad se justifica por la llegada de vientos con componente dominante oeste y el aumento en la velocidad media de los mismos (3.1 m/s), así como por el efecto de limpieza que se produjo en la atmósfera de Cáceres, debido a las precipitaciones (14.2 mm) ocurridas durante esas fechas, que favorecieron el depósito de una parte significativa del material radiactivo existente en dicho momento en la atmósfera.

Por último, a partir del 29 de Marzo los vientos, giraron a una dirección predominante del este, y aún cuando se produjeron importantes precipitaciones entre las fechas comprendidas entre el 18 y 29 de Abril (43.6 mm), los niveles que incidieron en Cáceres procedentes del resto de España habían disminuido lo suficiente para volver a ser inferiores a nuestras actividades mínimas detectables.

Cabe destacar que estas evoluciones temporales son similares a las encontradas por otros autores en diferentes regiones españolas. Sin embargo, los niveles de actividad detectados en Cáceres son ligeramente superiores a esas, debido fundamentalmente a que la nube radiactiva fue transportada desde el suroeste al noreste de España, ver figura 5.3 (Baeza et al., 2012, Lozano et al., 2011).

Paralelamente se detectaron concentraciones de actividad neta para el  $^{131}\text{I}$  en su forma gaseosa en la atmósfera de Cáceres durante el periodo de colección semanal del 22-29 de Marzo y del 29 de Marzo al 5 de abril de 2011, con unas actividades específicas de  $2800 \pm 700$  y  $3900 \pm 700 \mu\text{Bq/m}^3$ , respectivamente.

Cabe destacar que estas concentraciones son similares a las obtenidas durante ese mismo periodo para el caso del  $^{131}\text{I}$  en forma particulada.

En la tabla 5.2, se muestran los niveles de concentración máximos detectados para cada uno de los radionucleidos mencionados (en  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ), así como la contribución de cada uno de ellos a la concentración máxima total (en %), obtenida ésta como el sumatorio de las concentraciones máximas de actividad (en  $\mu\text{Bq}$ , obtenida del producto de la concentración máxima ( $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ) y del volumen aspirado ( $\text{m}^3$ )) de cada uno de los radionucleidos presentes en la tabla 5.2. Como se puede observar, los niveles de concentración, así como el porcentaje de contribución a la concentración total más elevados, se corresponden con el  $^{131}\text{I}$  (siendo mayor la contribución del  $^{131}\text{I}_{\text{particulado}}$ ), seguido del  $^{134,137}\text{Cs}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{132}\text{I}$  y  $^{136}\text{Cs}$ . El motivo de la diferente contribución individual encontrada sobre la concentración total, se debe al inventario de estos radionucleidos en el combustible utilizado en un reactor nuclear, ver anexo 2 (UNSCEAR, 1988) (Curso General de Formación de Actuantes en Emergencias Nucleares, CSN). Como se observa en dicho anexo, la actividad total para  $^{132}\text{I}$  y  $^{132}\text{Te}$  es mayor que la del  $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  y  $^{137}\text{Cs}$ . Sin embargo, dado que la vida media de los primeros es notablemente menor y por ello, su desintegración más rápida que para el resto de radionucleidos, justifica que la mayor contribución encontrada a la concentración total en los aerosoles sea la del  $^{131}\text{I}$ , seguida de la del  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{134}\text{Cs}$ .

Periodo de muestreo de mayor concentración	Isótopo	Concentración Máxima ± Incertidumbre		Contribución a la Concentración Máxima Total	
		( $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ )	( $\mu\text{Bq}$ )	(%)	
28-29 Marzo $V_{\text{aspirado}}(\text{m}^3): 9401$	$^{137}\text{Cs}$	$690 \pm 60$	$(6,49 \pm 0,56) \cdot 10^6$	14,0	
	$^{136}\text{Cs}$	$41 \pm 22$	$(3,85 \pm 2,06) \cdot 10^5$	0,8	
	$^{134}\text{Cs}$	$620 \pm 50$	$(5,83 \pm 0,47) \cdot 10^6$	12,6	
	$^{132}\text{I}$	$95 \pm 13$	$(8,93 \pm 1,22) \cdot 10^5$	1,9	
	$^{132}\text{Te}$	$212 \pm 23$	$(1,99 \pm 0,22) \cdot 10^6$	4,3	
	$^{131}\text{I}_{\text{particulado}}$	$3100 \pm 300$	$(2,91 \pm 0,28) \cdot 10^7$	63,0	66,4
29 Marzo-5 Abril $V_{\text{aspirado}}(\text{m}^3): 383,64$	$^{131}\text{I}_{\text{gaseoso}}$	$3900 \pm 700$	$(1,50 \pm 0,27) \cdot 10^6$	3,4	
<b>Concentración Máxima Total</b> <b>(<math>\mu\text{Bq}</math> totales)</b>			$4,62 \cdot 10^7$	100	

**Tabla 5.2. Máximos niveles detectados y su contribución a la concentración máxima total en aerosoles de Cáceres.**

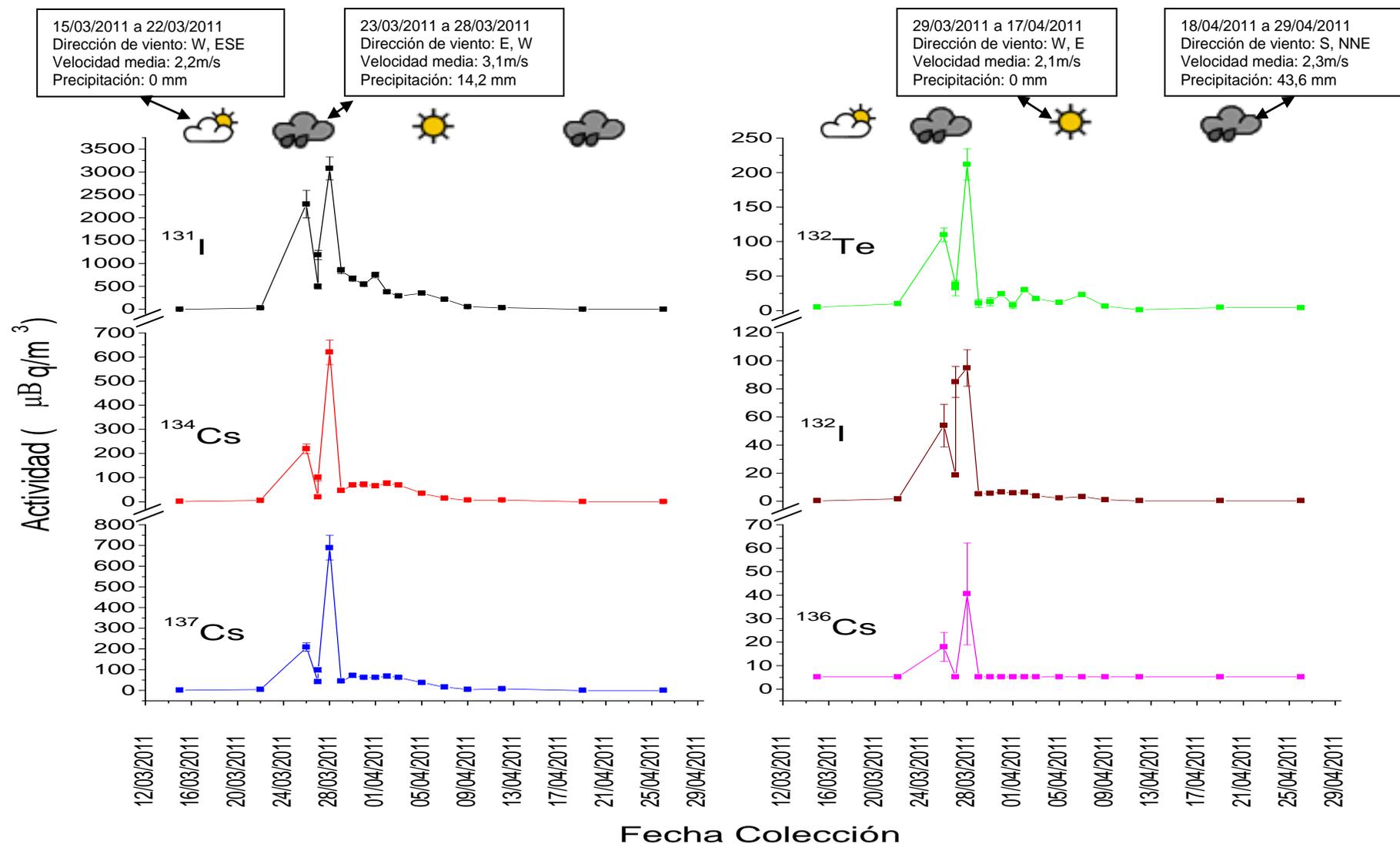


Figura 5.4. Evolución temporal de los niveles de  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{132}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{136}\text{Cs}$  y  $^{137}\text{Cs}$  ( $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ) en aerosoles de Cáceres y de las principales características meteorológicas locales durante dichas fechas.

Además de la determinación de los contribuyentes individuales a la nube (tabla 5.2), una de las características que la identifica de forma inequívoca, es conocer su razón isotópica, para aquellos elementos con más de un isótopo radiactivo presente en la nube. Así y a modo de ejemplo, como se observa en la figura 5.5, la razón  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  permanece prácticamente constante durante el periodo estudiado, con un valor próximo a la unidad. Este valor de la razón entre ambas actividades es similar a los obtenidos por diversos autores que han hecho su seguimiento en otras instalaciones (Masson et al., 2011). Por otra parte, este valor de la razón calculada permite realizar una estimación media para el grado de quemado del fuel en 25000 MWd/TU (Sthol et al., 2011), lo cual es según dicho autor consistente con el periodo de quemado del combustible en los reactores de la unidad 1 y 3.

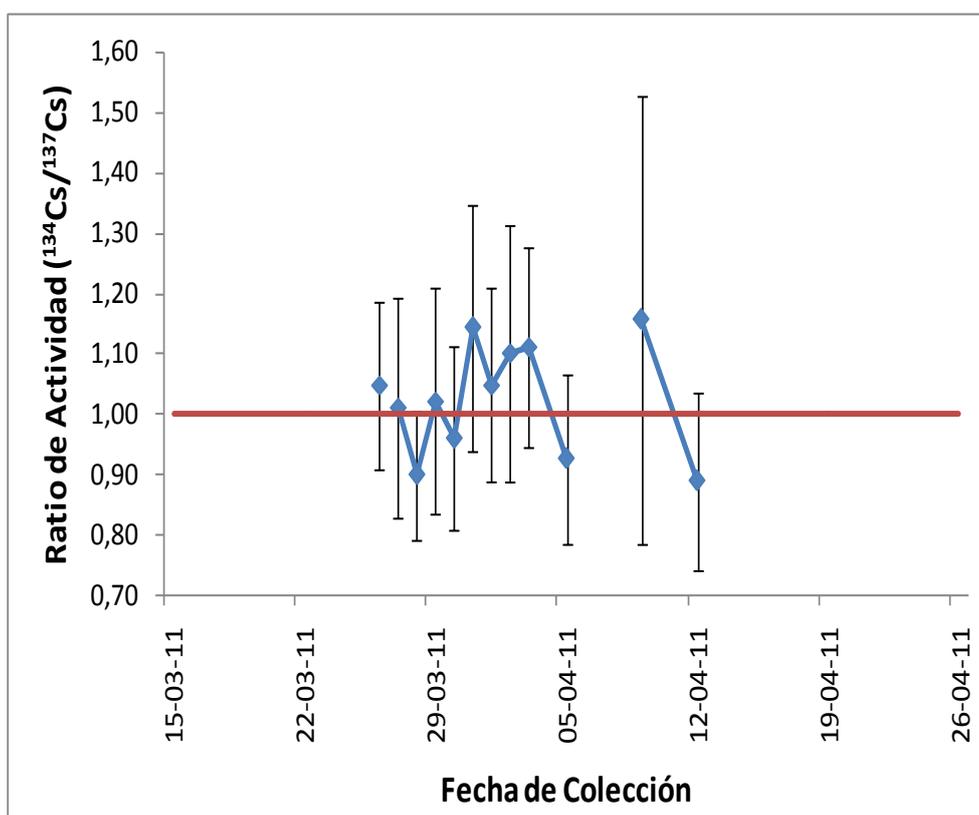


Figura 5.5. Evolución temporal de las ratios de actividad de  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  en aerosoles de Cáceres.

Otra de las relaciones isotópicas calculada a partir de las actividades medidas fue la del  $^{136}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ , siendo en este caso su valor menor a 0.3. Este mismo valor ha sido encontrado en otras estaciones de monitoraje Europeas (Masson et al., 2011), lo cual vuelve a confirmar el origen común de la nube radiactiva detectada en todos esos laboratorios. Este valor de la razón  $^{136}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  puede interpretarse en base a que se han producido ciertas evacuaciones procedentes de la piscina de combustible gastado de la Unidad 4; la cual contenía una mezcla de combustible fresco y antiguo (Baeza et al., 2012).

Debido al diferente comportamiento de las fracciones del  $^{131}\text{I}$ , particulada y gaseosa, se ha llevado a cabo también el cálculo de la razón  $^{131}\text{I}_{\text{gaseoso}}/^{131}\text{I}_{\text{total}}$ ; que proporciona información de los procesos ocurridos en la atmósfera durante el transporte de la nube radiactiva desde la zona de liberación, hasta el punto de muestreo. En este sentido, se observa que dicho valor ha ido aumentando con el tiempo, desde los 0.75 registrados en los últimos días de Marzo a los 0.85-0.90 en los primeros días de Abril. Este mismo comportamiento se ha observado en otras estaciones de monitoraje de Europa (Masson et al., 2011), hecho que podría indicar que la presencia de la fracción particulada del  $^{131}\text{I}$  en el aire no está en equilibrio, por el proceso de conversión gas-partícula, que dependen, entre otros parámetros, de la temperatura y de la humedad relativa de la atmósfera local.

Por último, como prueba de la enorme sensibilidad que posee el método de análisis utilizado, basado en el uso de un colector de aerosoles de alto flujo, se ha podido llevar a cabo un análisis comparativo entre los niveles detectados tras el accidente nuclear de Fukushima para  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  y  $^{131}\text{I}$ , con los detectados habitualmente durante el periodo en el que se ha utilizado dicha infraestructura, comprendido entre enero 2005 y diciembre de 2010. Dado que estos radionucleidos son de origen artificial, cabe destacar que durante el citado periodo temporal previo al accidente, tan sólo se ha detectado actividad específica neta esporádica para el  $^{137}\text{Cs}$ , dado fundamentalmente, a la ubicación del colector de alto flujo utilizado, a la resuspensión desde el suelo del fallout procedente de las pruebas nucleares atmosféricas realizadas en la década de los años 50, mientras que para el  $^{134}\text{Cs}$  y  $^{131}\text{I}$ , no se han detectado actividades superiores sus respectivos valores mínimos detectables en ninguna de las muestras analizadas durante el precitado periodo previo al accidente.

En la tabla 5.3, se muestra el valor medio de actividad (V.M.) de los niveles de  $^{137}\text{Cs}$  detectados habitualmente, así como los AMD y el porcentaje de muestras

analizadas con una actividad específica neta superior a éste. Para el caso de  $^{134}\text{Cs}$  y  $^{131}\text{I}$  se muestran exclusivamente los valores de AMD alcanzados en las muestras medidas durante el periodo mencionado anteriormente. Además, para todos ellos, se presentan el valor máximo y mínimo detectado en la atmósfera de Cáceres tras el accidente nuclear de Fukushima, durante el periodo comprendido entre el 15 de Marzo al 29 de Abril de 2011.

Como se puede observar en dicha tabla, los niveles de actividad máximos detectados tras el accidente nuclear de Fukushima superan en 4000 veces el valor habitual de AMD para el  $^{137}\text{Cs}$ , 3600 veces el AMD para el  $^{134}\text{Cs}$  y 17500 veces el AMD para el  $^{131}\text{I}$ . Por otra parte hay que destacar que los niveles de notificación al organismo regulador español (Consejo de Seguridad Nuclear) son de:  $4 \cdot 10^5 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  para el  $^{131}\text{I}$ ,  $2 \cdot 10^5 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  para  $^{137}\text{Cs}$  y  $3 \cdot 10^5 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  para  $^{134}\text{Cs}$ . De su comparación puede deducirse que, los niveles máximos detectados para los precitados radionucleidos son muy inferiores a estos últimos valores de referencia y, por tanto, que se puede garantizar que no representaron concentraciones peligrosas para el ser humano.

Valores estándar antes del accidente de la CN de Fukushima				Valores durante el impacto en Cáceres de la nube procedente de Fukushima	
Radionucleido	V.M. $\pm 2\sigma$ ( $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ )	AMD ( $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ )	Porcentaje muestras $A > \text{AMD}$	( $A_{\text{mín}} - A_{\text{máx}}$ ) ( $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ )	( $A_{\text{mín}}/\text{AMD}$ ) - ( $A_{\text{máx}}/\text{AMD}$ )
$^{137}\text{Cs}$	(0,63 $\pm$ 0,42)	0,164	25,4 %	5,71-690	35-4182
$^{134}\text{Cs}$	-	0,169	0 %	1,28-620	8-3669
$^{131}\text{I}$	-	0,176	0 %	1,63-3080	9-17500

**Tabla 5.3. Valores de Actividad (A) y AMD estándar frente a niveles de actividad tras el accidente nuclear de Fukushima para  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  y  $^{131}\text{I}$ .**

Debido a que estos niveles detectados para los citados radionucleidos artificiales son superiores a sus respectivos AMD, ha parecido interesante valorar en

el presente trabajo la dosis incorporada por inhalación, para dos grupos de edad: de 1-2 años y mayores a 17 años, con una tasa de inhalación media de 3,8 y 23 m<sup>3</sup>/día, respectivamente (ICRP, 1984).

En la tabla 5.4, se presentan las tasas de dosis máximas incorporadas por inhalación ( $\dot{D}_{\text{máx,inh}}$ ), calculadas éstas a partir de los valores de concentración máxima detallados en la tabla 5.2 y que fueron detectados durante el periodo comprendido entre el 15 de Marzo y 29 de Abril de 2011, para cada uno de los radionucleidos objeto de estudio; así como el porcentaje de dosis con que cada uno de estos radionucleidos contribuyen a la tasa de dosis total máxima inhalada (suma de todos ellos) ( $\dot{D}_{\text{Tmáx,inh}}$ ) y, la relación existente entre la dosis máxima permitida por el Reglamento sobre Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes para los miembros de público ( $\dot{D}_{\text{perm}} = 1 \text{ mSv/año} = 0,114 \text{ }\mu\text{Sv/h}$ ) (BOE, 2001) y la dosis total máxima inhalada.

Como se puede observar, el <sup>131</sup>I es el que mayor contribución tiene al cómputo global de la dosis, un 66%, para el grupo de edad de 1-2 años. Por otro lado, al comparar los porcentajes con que estos radionucleidos contribuyen a la dosis total máxima incorporada por inhalación, con el porcentaje con que contribuyen a la concentración máxima total detectada (ver tabla 5.2), se observa que en ambos casos estas contribuciones son similares.

Radionucleido	$\dot{D}_{\text{máx,inh}} (\mu\text{Sv/h})$		Contribución a $\dot{D}_{\text{Tmáx,inh}} (\%)$		$\frac{\dot{D}_{\text{perm}} (\mu\text{Sv/h})}{\dot{D}_{\text{Tmáx,inh}} (\mu\text{Sv/h})}$	
	1-2 a	<17 a	1-2 a	<17 a	1-2 a	<17 a
$^{131}\text{I}_{(\text{gas+particulado})}$	$3.54 \cdot 10^{-5}$	$2.20 \cdot 10^{-5}$	66.18	36.39	<b>2135</b>	<b>1887</b>
$^{137}\text{Cs}$	$1.09 \cdot 10^{-5}$	$2.58 \cdot 10^{-5}$	20.38	42.68		
$^{134}\text{Cs}$	$6.17 \cdot 10^{-6}$	$1.19 \cdot 10^{-5}$	11.53	19.69		
$^{136}\text{Cs}$	$7.13 \cdot 10^{-8}$	$1.10 \cdot 10^{-7}$	0.13	0.18		
$^{132}\text{I}$	$1.44 \cdot 10^{-8}$	$1.00 \cdot 10^{-8}$	0.03	0.02		
$^{132}\text{Te}$	$9.38 \cdot 10^{-7}$	$6.32 \cdot 10^{-7}$	1.75	1.05		
$\dot{D}_{\text{Tmáx,inh}} (\mu\text{Sv/h})$	<b><math>5,34 \cdot 10^{-5}</math></b>	<b><math>6,04 \cdot 10^{-5}</math></b>	<b>100</b>	<b>100</b>		

Tabla 5.4. Valores de la máxima tasa de dosis máxima incorporada por inhalación, individual ( $\dot{D}_{\text{máx,inh}}$ ) (para cada uno de los radionucleidos detectados) y total ( $\dot{D}_{\text{Tmáx,inh}}$ ) (para la suma de todos ellos), expresadas en  $\mu\text{Sv/h}$ , contribución de cada una de las tasas de dosis máximas individuales a la total, expresada en % y, comparación entre dosis máxima permitida ( $\dot{D}_{\text{perm}} = 1 \text{ mSv/año} = 0,114 \mu\text{Sv/h}$ ) para el público en general (BOE, 2001) frente a dosis total máxima inhalada por éste.

En el caso de la dosis incorporada por inhalación para personas mayores de 17 años, se observa que la contribución al cómputo global de la dosis está equiparada para el  $^{131}\text{I}$  y el  $^{137}\text{Cs}$ , debido a que para este grupo de edad, a diferencia del grupo de 1-2 años, la dosis eficaz comprometida por unidad de incorporación ( $(h(g))_{\text{inh}}$ ) es prácticamente la misma para ambos radionucleidos.

No obstante, para los dos grupos de edad estudiados, la dosis total inhalada es prácticamente la misma y en cualquier caso, del orden de 2000 veces inferior a la dosis máxima permitida según el reglamento citado con anterioridad.

Asimismo en la tabla 5.5, se presentan las tasas de dosis por inhalación ( $\dot{D}_{inh}$ ), para los dos grupos de edad citados con anterioridad, correspondientes al sumatorio de las actividades detectadas durante todo el periodo comprendido entre el 22 de Marzo de 2011 y el 5 de Abril de 2011, para cada uno de los radionucleidos objeto de estudio; así como el porcentaje de dosis con que estos radionucleidos contribuyen a la dosis total inhalada ( $\dot{D}_{T,inh}$ ) y, la relación entre la dosis máxima permitida ( $\dot{D}_{perm} = 1 \text{ mSv/año} = 19,23 \text{ }\mu\text{Sv/semana}$ ) por el Reglamento sobre Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes para los miembros de público (BOE, 2001) y la dosis total inhalada. Como se puede observar los resultados obtenidos en este caso son similares a los presentados en la tabla 5.4. Sin embargo, en este caso la dosis incorporada por inhalación durante un periodo de una semana fue del orden de 11000 veces inferior a la dosis máxima permitida según el citado reglamento.

Por tanto, se puede concluir que aún cuando los niveles máximos de actividad para los radionucleidos objeto de estudio son varios miles de veces superiores a nuestro AMD; sin embargo, la tasa de dosis inhalada correspondiente a estos valores de actividad se encuentra en el rango de 2000 a 11000 veces por debajo de la dosis máxima permitida por el Reglamento sobre Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes para los miembros del público y, por tanto, pueden considerarse despreciables desde dicha óptica para el ser humano.

Todo ello pone de manifiesto que la liberación de niveles traza de actividad de radionucleidos artificiales, producida tras un accidente nuclear, que ha ocurrido a varios miles de kilómetros de nuestra área de observación en Cáceres, son perfectamente detectables, si las condiciones climatológicas son las adecuadas, mediante el uso de colectores de aerosoles de alto flujo y posterior análisis espectrométrico gamma, lo cual demuestra la enorme sensibilidad y utilidad que se posee con dicha instrumentación.

Radionucleido	$\dot{D}_{inh}$ ( $\mu\text{Sv}/\text{semana}$ )		Contribución a $\dot{D}_{T,inh}$ (%)		$\frac{\dot{D}_{perm} (\mu\text{Sv}/\text{semana})}{\dot{D}_{T,inh} (\mu\text{Sv}/\text{semana})}$	
	1-2 a	<17 a	1-2 a	<17 a	1-2 a	<17 a
$^{131}\text{I}_{(\text{gas+particulado})}$	$1.23 \cdot 10^{-3}$	$7.65 \cdot 10^{-4}$	71.64	42.87	<b>11180</b>	<b>10803</b>
$^{137}\text{Cs}$	$2.77 \cdot 10^{-4}$	$6.53 \cdot 10^{-4}$	16.13	36.60		
$^{134}\text{Cs}$	$1.74 \cdot 10^{-4}$	$3.35 \cdot 10^{-4}$	10.13	18.77		
$^{136}\text{Cs}$	$8.19 \cdot 10^{-6}$	$1.26 \cdot 10^{-5}$	0.48	0.71		
$^{132}\text{I}$	$1.94 \cdot 10^{-6}$	$1.35 \cdot 10^{-6}$	0.11	0.08		
$^{132}\text{Te}$	$2.58 \cdot 10^{-5}$	$1.74 \cdot 10^{-5}$	1.50	0.98		
$\dot{D}_{T,inh}$ ( $\mu\text{Sv}/\text{semana}$ )	<b><math>1.72 \cdot 10^{-3}</math></b>	<b><math>1.78 \cdot 10^{-3}</math></b>	<b>100</b>	<b>100</b>		

**Tabla 5.5. Valores de la tasa de dosis incorporada por inhalación, individual ( $\dot{D}_{inh}$ ) (para cada uno de los radionucleidos detectados) y total ( $\dot{D}_{T,inh}$ ) (para la suma de todos ellos), expresadas en  $\mu\text{Sv}/\text{semana}$ , contribución de cada una de las tasas de dosis individuales a la total, expresada en % y, comparación entre dosis permitida ( $\dot{D}_{perm} = 1 \text{ mSv}/\text{año} = 19,23 \mu\text{Sv}/\text{semana}$ ) para el público en general (BOE, 2001) frente a dosis total inhalada por éste.**

### **5.3.2.- Otros tipos de muestras atmosféricas analizadas:**

Paralelamente al muestreo de aerosoles en la atmósfera de Cáceres, se han colectado y analizado otros tipos de muestras, con el fin de realizar el estudio más amplio que fue posible, sobre el impacto que el accidente nuclear de Fukushima tuvo en la atmósfera de Cáceres.

En este sentido, se recolectaron muestras de tritio atmosférico durante el periodo comprendido entre el 9 y 28 de Marzo de 2011 (el volumen total muestreado fue de  $0,559 \text{ m}^3$ ) con el colector de tritio activo (MARC 7000) descrito en el capítulo 2 del presente trabajo. Posteriormente, se determinó la actividad del tritio atmosférico, tanto en su forma oxidada (HTO y  $\text{T}_2\text{O}$ ) como en la reducida (HT y  $\text{T}_2$ ), obteniéndose

en todas sus formas valores de actividad inferiores al AMD del procedimiento, es decir, 24 mBq/m<sup>3</sup> en ambos casos.

Por último, se tomaron muestras de la deposición húmeda (lluvia) habida durante el periodo de estudio. Así, se llevó a cabo la determinación del <sup>131</sup>I en el agua de lluvia recogida el 29 de Marzo de 2011 (precipitación: 2,0 mm), previa extracción selectiva de éste, resultando de dicho análisis una concentración volumétrica de  $(1,55 \pm 0,06) \cdot 10^3$  Bq/m<sup>3</sup>. Esta concentración de <sup>131</sup>I en el agua de lluvia es del mismo orden que las detectadas en otras localizaciones españolas, con precipitaciones similares durante dicho periodo. Así por ejemplo, la concentración volumétrica de <sup>131</sup>I detectada en el agua de lluvia en Sevilla (España), recolectada el 29 de Marzo de 2011, fue de  $(2,06 \pm 0,17) \cdot 10^3$  Bq/m<sup>3</sup>, para una precipitación de 1,6 mm (Baeza et al., 2012).

En cuanto al contenido de tritio en agua de lluvia, cabe destacar que tan sólo se ha detectado actividad específica neta, con una concentración volumétrica de  $(2,6 \pm 1,1) \cdot 10^3$  Bq/m<sup>3</sup>, en el caso de “agua de rocío” recogida el 28 de Marzo de 2011. Al comparar esta actividad de tritio detectada, con el rango de los niveles de tritio  $((0,19-2,44) \cdot 10^3$  Bq/m<sup>3</sup>) detectados en el agua de lluvia en la población de Cáceres (véase tabla 2.2 de la presente memoria) en años previos y posteriores al accidente nuclear de Fukushima, se puede concluir que en el caso de este radionucleido no ha habido un impacto radiológico mínimamente significativo del mismo en la atmósfera de Cáceres como consecuencia del accidente nuclear de Fukushima.

#### **5.4.- Conclusiones:**

Una vez analizado el impacto que el accidente de la central nuclear de Fukushima ejerció sobre la atmósfera de Cáceres, procedemos a detallar los principales resultados y conclusiones obtenidos en el presente capítulo.

1. Los efectos de los restos de la nube radiactiva procedente de Fukushima se registraron en la atmósfera de Cáceres, en el filtro de aerosoles recolectado en la bomba de alto flujo entre los días 15 a 22 de Marzo del 2011.

2. La capacidad del procedimiento seguido, recolección con bomba de alto flujo y medida por espectrometría gamma de alta resolución, demostró de nuevo su elevada sensibilidad al poder detectar radionucleidos artificiales, algunos con vida media tan corta como los seguidamente listados: <sup>131</sup>I (T<sub>1/2</sub>: 8 días), <sup>134</sup>Cs (T<sub>1/2</sub>: 2.1 años), <sup>136</sup>Cs (T<sub>1/2</sub>: 13.2 días), <sup>137</sup>Cs (T<sub>1/2</sub>: 30.1 años), <sup>132</sup>Te (T<sub>1/2</sub>: 3.2 días) y <sup>132</sup>I (T<sub>1/2</sub>: 2.3 horas).

3. Las actividades máximas detectadas en el aire para radionucleidos emisores gamma fueron de 3100 y 3900  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$  para las fracciones particulada y gaseosa, respectivamente del  $^{131}\text{I}$ . La ordenación de las actividades las actividades máximas para todos los emisores gamma detectados es:

$$^{131}\text{I}_{\text{gaseoso}} \approx ^{131}\text{I}_{\text{particulado}} \gg ^{137}\text{Cs} \approx ^{134}\text{Cs} > ^{132}\text{Te} > ^{132}\text{I} > ^{136}\text{Cs}.$$

4. Dichas actividades son miles de veces superiores a la capacidad de detección del método (4000 veces el valor habitual de AMD( $^{137}\text{Cs}$ ) y 17500 veces el AMD( $^{131}\text{I}$ )). Sin embargo, las actividades netas registradas son fácilmente calificables de despreciables al encontrarse órdenes de magnitud por debajo de los niveles de notificación obligatoria al Consejo de Seguridad Nuclear (desde los 10,2 veces para el  $^{131}\text{I}$ , a los 30 veces para el  $^{137}\text{Cs}$ ).

5. La duración de la anomalía radiológica debida a los restos de la nube radiactiva producida en Fukushima fue detectable en la atmósfera de Cáceres entre los días 15 de marzo a 29 de abril, con especial intensidad del el 15 al 30 de marzo. Su origen fue indudablemente el antes apuntado, ya que su entrada en la atmósfera de Cáceres se debió a los vientos que en dicho momento soplaban en la zona con dirección W,ESE, mientras que su desaparición de la misma se debió a los vientos con dirección S,NNE que fueron los dominantes a partir del 18 de abril. Además, la relación isotópica calculada para varias parejas de isótopos radiactivos de un mismo elemento (a modo de ejemplo:  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} = 1,0$ ;  $^{136}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} = 0,3$ ;  $^{131}\text{I}_{\text{gaseoso}}/^{131}\text{I}_{\text{particulado}} = 0,75-0,90$ ) coincide con las predicciones efectuadas por otros investigadores en diferentes partes del mundo y que se atribuye a la mencionada nube originada en Fukushima.

6. La dosis por inhalación que incorporó la población Cacereña en dichas fechas fue debida principalmente a la suma de las dos fracciones (particulada y gaseosa) del  $^{131}\text{I}$ , siendo su contribución concretamente del 66% y 36% de la dosis total incorporada por esta vía, respectivamente para los dos grupos de edad considerados (1-2 años y mayores de 17 años). En cualquier caso, la dosis total incorporada por inhalación, debe calificarse de despreciable desde la óptica de la protección radiológica de la población de Cáceres, ya que ésta es del orden de 2000 veces menor que la máxima permisible por nuestra legislación (1mSv/a), prácticamente independiente del grupo de edad considerado (1-2 años y mayores de 17 años).

# Capítulo 6

## BIBLIOGRAFÍA

1. Abe T, Kosako T, Komura K. *Relationship between variations of  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{212}\text{Pb}$  concentrations and sub-regional atmospheric transport: Simultaneous observation at distant locations.* J Environ Radioact. 2010; 101:113–121.
2. Agencia Estatal de Meteorología (AEMET). Datos meteorológicos facilitados por la AEMET de Badajoz. Comunicación privada, 2014.
3. Akata N, Kakiuchi H, Shima N, Iyogi T, Momoshima N, Hisamatsu S. *Tritium concentrations in the atmospheric environment at Rokkasho, Japan before the final testing of the spent nuclear fuel reprocessing plant.* J Environ Radioact. 2011; 102:837-842.
4. Akata N, Kawabata H, Hasegawa H, Sato T, Chikuchi Y, Kondo K, et al. *Total deposition velocities and scavenging ratios of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  at Rokkasho, Japan.* J Environ Radioact. 2008; 277:347-355.
5. Alegría N, Herranz M, Idoeta R, Legarda F. *Study of  $^7\text{Be}$  activity concentration in the air of northern Spain.* J Radioanal Nucl Chem. 2010; 286:347–351.
6. Ali N, Khan EU, Akhter P, Khattak NU, Khan F, Rana MA. *The effect of air mass origin on the ambient concentrations of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in Islamabad, Pakistan.* J Environ Radioact. 2011; 102:35-42.
7. Arnold D, Vargas A, Ortega X. *Analysis of outdoor radon progeny concentration measured at the Spanish radioactive aerosol automatic monitoring network.* Appl Radiat Isot. 2009; 67:833–838.
8. Baeza A, Corbacho JA, Rodríguez A, Galván J, García-Tenorio R, Manjón G, et al. *Influence of the Fukushima Dai-ichi nuclear accident on Spanish environmental radioactivity levels.* J Environ Radioact. 2012; 114:138-145.
9. Baeza A, Del Río LM, Jiménez A, Miró C, Paniagua JM, Rufo M. *Analysis of the temporal evolution of atmospheric  $^7\text{Be}$  as a vector of the behavior of other radionuclides in the atmosphere.* J Radioanal Nucl Chem. 1996; 207(2):331-344.
10. Baeza A, Del Río LM, Jiménez A. *Procedure for Simultaneous Determination of  $^{223,224,226,228}\text{Ra}$  by Alpha and Gamma Spectrometry.* Radiochim Acta. 1998; 83:53-60.
11. Baeza A, Del Río M, Miró C, Paniagua J. *Radiological impact of the Almaraz Nuclear Power Plant (Spain) during 1986 to 1989 on the surrounding environment.* J Radioanal Nucl Chem. 1991; 152:175-188.

12. Baeza A, García E, Miró C, Rodríguez A, Sequeira MM. *Behaviour of tritium in the waters of the river Tagus*. Fusion Sci Technol. 2005; 48:488-491.
13. Baeza A, García E, Paniagua JM, Rodríguez A. *Study of the comparative dynamics of the incorporation of tissue free-water tritium (TFWT) in bulrushes (Typha latifolia) and carp (Cyprinus carpio) in the Almaraz nuclear power plant cooling reservoir*. J Environ Radioact. 2009; 100:209-214.
14. Baeza A, Hernández S, Guillén FJ, Moreno G, Manjón JL, Pascual R. *Radiocaesium and natural gamma emitters in mushrooms collected in Spain*. Sci Total Environ. 2004; 318:59-71.
15. Baonza E, Plata A, Jiménez JA, Ruíz Mateos A. *Estudio del comportamiento dinámico del estuario del río Guadalquivir*. Isotope Hydrology. 1979; 2:847-873.
16. Barrachina M. *Tecnología del tritio. Parte I. Fundamentos*. Energía Nuclear España. 1985; 157:383-396.
17. Baskaran M, Shaw GE. *Residence time of arctic haze aerosols using the concentrations and activity ratios for  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$* . J Aerosol Sci. 2001; 32:443-452.
18. Błażej S, Mietelski JW. *Cosmogenic  $^{22}\text{Na}$ ,  $^7\text{Be}$  and terrestrial  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  radionuclides in ground level air samples collected weekly in Kraków (Poland) over years 2003-2006*. J Radioanal Nucl Chem. 2014; 300:747-756.
19. Boletín Oficial del Estado nº 178 de 26/07/2001 (BOE, 2001). RD 783/2001, de 6 de julio, por el que se aprueba el "Reglamento sobre protección sanitaria contra radiaciones ionizantes".
20. Bonet E. *Central Nuclear de Almaraz: Aspectos medioambientales*. Nuclear España. 1995; 144:49-53.
21. Bourcier L, Masson O, Laj P, Pichon JM, Paulat P, Freney E, et al. *Comparative trends and seasonal variation of  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  at two altitude sites in the central part of France*. J Environ Radioact. 2011; 102:294-301.
22. Brost RA, Chatfield RB. *Transport of radon in a three-dimensional, sub-hemispheric model*. J Geophys Res. 1989; 94:5095-5119.
23. Brown RM. *A review of tritium dispersal in the environment*. In: Bonzoni G, Sindoni E eds. *Tritium and advanced fuels in fusion reactors*. Bologna: Società Italiana di Fisica. 1989; 557-576.

24. Camacho A, Valles I, Vargas A, Gonzalez-Perosanz M, Ortega X. *Activity size distributions for long-lived radon decay products in aerosols collected in Barcelona (Spain)*. Appl Radiat Isot. 2009; 67:872–875.
25. Carvalho AC, Reis M, Silva L, Madruga MJ. *A decade of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  activity in surface aerosols measured over the Western Iberian Peninsula*. Atmos Environ. 2013; 67:193-202.
26. Carvalho FP. *Origins and concentrations of  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  and  $^{210}\text{Po}$  in the surface air at Lisbon, Portugal, at the Atlantic edge of the European continental landmass*. Atmos Environ. 1995; 29(15):1809-1819.
27. Centro Nacional de Aceleradores (CNA). Resultados del análisis de  $^{10}\text{Be}$  en muestras de aerosoles. Comunicación privada, 2009.
28. Consejo de la Unión Europea (CE). *Directiva 96/29/EURATOM*. Diario Oficial de la Unión Europea. 29/06/1996. 1996.
29. Consejo de Seguridad Nuclear. *Informes al Congreso de los Diputados y al Senado*. Años 1988 a 1994.
30. Consejo de Seguridad Nuclear. *Los efluentes radiactivos en las centrales nucleares españolas (1980-1997)*. Colección Documentos CSN. Nº 5.1999. Consejo de Seguridad Nuclear. 1999.
31. Consejo de Seguridad Nuclear. *Procedimiento de toma de muestras de vapor de agua para la determinación de tritio*. Colección de informes técnicos 11.2009. Procedimiento 1.14. Consejo de Seguridad Nuclear. 2009.
32. Consejo de Seguridad Nuclear. *Programas de vigilancia radiológica ambiental. Resultados 2001*. Colección de informes técnicos. Nº 9.2002. Consejo de Seguridad Nuclear. 2003.
33. Daish SR, Dale AA, Dale CJ, May R, Rowe J. *The temporal variations of  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  in air in England*. J Environ Radioact. 2005; 86:457-467.
34. Díaz MF. *“Determinación de bajos niveles de tritio en aguas. Técnicas de concentración”*. Aplicaciones Nucleares. C.E.T.A. CEDEX. Madrid 1991.
35. Długosz M, Grabowski P, Bem H.  *$^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  radionuclides in the urban air of Lodz, Poland*. J Radioanal Nucl Chem. 2010; 283:719–725.
36. Doering C, Akber R. *Beryllium-7 in near-surface air and deposition at Brisbane, Australia*. J Environ Radioact. 2008; 99:461-467.

37. Dueñas C, Fernández MC, Cañete S, Pérez M.  *$^7\text{Be}$  to  $^{210}\text{Pb}$  concentration ratio in ground level air in Málaga (36.7°N, 4.5°W)*. Atmos Res. 2009; 92:49–57.
38. Dueñas C, Fernández MC, Carretero J, Liger E, Cañete S.  *$^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  concentrations in air in Málaga (Spain)*. J Radioanal Nucl Chem. 2003; 257(2):249-253.
39. Dueñas C, Fernández MC, Carretero J, Liger E, Cañete S. *Deposition velocities and washout ratios on a coastal site (southeastern Spain) calculated from  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  measurements*. Atmos Environ. 2005; 39:6897–6908.
40. Dueñas C, Fernández MC, Carretero J, Liger E, Cañete S. *Long-term variation of the concentrations of long-lived Rn descendants and cosmogenic  $^7\text{Be}$  and determination of the MRT of aerosols*. Atmos Environ. 2004; 38:1291–1301.
41. Dueñas C, Orza JAG, Cabello M, Fernández MC, Cañete S, Pérez M et al. *Air mass origin and its influence on radionuclide activities ( $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$ ) in aerosol particles at a coastal site in western Mediterranean*. Atmos Res. 2011; 101(1-2):205-214.
42. Durana L, Chudy M, Masarik J. *Investigation of  $^7\text{Be}$  in the Bratislava atmosphere*. J Radioanal Nucl Chem. 1996; 207(2):345-356.
43. EL-Hussein A, Mohamemed A, Abd EL-Hady M, Ahmed AA, Ali AE, Barakat A. *Diurnal and seasonal variation of short-lived radon progeny concentration and atmospheric temporal variations of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  in Egypt*. Atmos Environ. 2001; 35:4305-4313.
44. EURATOM, 1989. Reglamento EURATOM N° 2218/89 del Consejo, de 18 de Julio de 1989, por el que se modifica el Reglamento (Euratom) n° 3954/87. (in Spanish).
45. Evangelidou N, Balkanski Y, Cozic A, Hao MW, Møller AP. *Wildfires in Chernobyl-contaminated forest and risks to the population and the environment: A new nuclear disaster about to happen?*. Environ Int. 2014; 73:346-358.
46. Feely HW, Larsen RJ, Sanderson C.G. *Factors that cause seasonal variation in  $^7\text{Be}$  concentrations in surface air*. J Environ Radioact. 1989; 9:223-249.
47. Fontes JCh. *Dating of groundwater*. Guidebook on nuclear techniques in hydrology. IAEA, Technical Report Series, 1983; 91:285-317. Viena. (FONTES 83)

48. Fontes JCh. *Groundwater in fracture rocks*. Guidebook on nuclear techniques in hydrology. IAEA, Technical Report Series, 1983; 91:337-350. Viena. (FONTES 83b).
49. García Delgado E. *Utilización del tritio para modelar la evolución radiactiva del río Tajo a su paso por Extremadura*. Tesis Doctoral. Universidad de Extremadura. 2000.
50. Gascó C, Álvarez A. Sp SIN 0081-3397. CIEMAT 617, Madrid, 1988.
51. Grabowska S, Mietelski JW, Kozak K, Gaca P. *Gamma emitters on micro-becquerel activity level in air at Kraków (Poland)*. J Atmos Chem. 2003; 46:103-116.
52. Guillén J. *Estudio de la transferencia de la contaminación radiactiva a los hongos*. Tesis Doctoral, Universidad de Extremadura, 2002.
53. *HASL-300 Procedure manual (Environmental Measurements Laboratory)*. Ed. 2. Herbertl, Volcholk, 1976.
54. Hernandez F, Rodríguez S, Karlsson L, Alonso-Pérez S, López-Pérez M, Hernandez-Armas J, et al. *Origin of observed high <sup>7</sup>Be and mineral dust concentrations in ambient air on the Island of Tenerife*. Atmos Environ. 2008; 42:4247-4256.
55. Hernández VE, Aparicio J. *Caracterización de aerosoles por quema de biomasa en el sureste de México*. Tecnologías y Ciencias del Agua. Vol. V, núm. 1, enero-febrero 2014. pp 145-156.
56. Hernández-Ceballos MA, Adame JA, Bolívar JP, De la Morena BA. *Vertical behavior and meteorological properties of air masses in the southwest of the Iberian Peninsula*. Meteorol Atmos Phys. 2013; 119(3):163-175.
57. Hölgye Z. *Plutonium isotopes in surface air of Prague in 1986-2006*. J Environ Radioact. 2008; 99:1653-1655.
58. International Atomic Energy Agency. *Status report of controlled thermonuclear fusion: Executive summary and general overview*. Prepared by the International fusion research council. Vienna: IAEA. Report No. STI/PUB/872. 1990.
59. International Commission on Radiological Protection (ICRP). *Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60*. ICRP Publication 119. Ann. ICRP 41(Suppl.). 2012.
60. International Commission on Radiological Protection (ICRP). *Report of the Task Group on Reference Man*. N° 23. 1984.

61. International Council on Radiological Protection. *Limits for intakes of radionuclides by workers*. ICRP Publication 30, Part I. Pergamon Press. Oxford. 1978.
62. IRSN, 2011a. *Évaluation de la radioactivité rejetée par la centrale de Fukushima Dai-ichi (Fukushima I)* Report 22. March 2011.
63. IRSN, 2011b. Synthèse des résultats des mesures de la radioactivité dans le cadre de la surveillance de l'impact à très longue distance des rejets de l'accident de Fukushima. Report 26 March 2011.
64. Jacob DJ, Prather MJ, Rasch PJ, Shia R, Balkanski YJ, Beagley SR, et al. *Evaluation and intercomparison of global atmospheric transport models using  $^{222}\text{Rn}$  and other short-lived tracers*. J Geophys Res. 1997; 102:5953-5970.
65. Joint Research Centre (JRC). *Environmental radioactivity in the European Community 1992*. Luxemburgo (1997), pp 80.
66. Kaufman S, Libby WF. *The natural distribution of tritium*. Phys Rev. 1954; 93:1337-1344.
67. Khan S, Alaamer AS, Tahir SNA. *Assessment of  $^7\text{Be}$  concentration in outdoor ambient air*. Health Phys. 2008; 95(4):433-435.
68. Kimura H, Fukuta K, Satoh N, Tanabe O, Yoshikawa O. *Monitoring of environmental radiation and radionuclides around nuclear fuel facilities from 1989 to 1995*. J Radioanal Nucl Chem. 1997; 226:211-215.
69. Kolb W. *Thorium, uranium and plutonium in surface air at Vardö*. J Environ Radioact. 1995; 31:1-6.
70. Krmar M, Radnović D, Rakic S, Matavuly M. *Possible use of terrestrial mosses in detection of atmospheric deposition of  $^7\text{Be}$  over large areas*. J Environ Radioact. 2007; 95:53-61.
71. La Rosa JJ, Cooper EL, Ghods-Esphahani A, Jansta V, Makarewicz M, Shawky S, et al. *Radiochemical methods used by the IAEA's laboratories at Seibesdorf for the determination of  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{144}\text{Cs}$  and Pu radionuclides in environmental samples collected for the International Chernobyl Project*. J Environ Radioact. 1992; 17:183-209.
72. Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Extremadura (LARUEX). "*PL-74: Procedimiento de patrones de tritio para calibrado en eficiencia del equipo de centelleo líquido*". Procedimiento interno del LARUEX.

73. Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Extremadura (LARUEX). "PL-75: *Funcionamiento del Quantulus 1220*". Procedimiento interno del LARUEX.
74. Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Extremadura (LARUEX). "PL-77: *Procedimiento para la determinación de tritio en muestras de agua no concentradas electrolíticamente*". Procedimiento interno del LARUEX.
75. Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Extremadura (LARUEX). "PL-78: *Procedimiento para la determinación de tritio en muestras de agua concentradas electrolíticamente*". Procedimiento interno del LARUEX.
76. Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Extremadura (LARUEX). "PL-05: *Procedimiento para la extracción selectiva de radioyodos en muestras de agua*". Procedimiento interno del LARUEX.
77. Lal D, Peters B. *Cosmic rays produced radioactivity on the Earth*. Kosmische Strahlung II/Cosmic Rays II. Volume 9/46/2 of the series Handbuch der Physik/Encyclopedia of Physics. ISBN: 978-3-642-46081-4. Springer Berlin Heidelberg (Berlin, Heidelberg); 1967; p. 551-612.
78. Lee HN. *EML's global network measuring surface radionuclides and their analyses*. Ponencia presentada en International conference on Radioactivity in the Environment, celebrada en Mónaco en 2002.
79. Lee SC, Orlandini KA, Webb J, Schoep D, Kirchner T, Fingleton DJ. *Measurement of baseline atmospheric plutonium-239,240 and americium-241 in the vicinity of the waste isolation pilot plant*. J Radioanal Nucl Chem. 1998; 234:267-272.
80. Libby WF. "Historia del tritio". Tritium. Moghissi y Carter eds. Messenger Graphics, Las Vegas, 1975.
81. Likuku AS. *Factors influencing ambient concentration of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  over the city of Edinburg (55.9°N, 03.2°W)*. J Environ Radioact. 2006; 87:289-304.
82. López A, Ferrero JL, Navarro E, Baeza A, Guillén FJ (1998). *Espectrómetro gamma de alta resolución con supresión de efecto Compton para medidas de radiactividad ambiental*. Presentación de la 24 Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española, celebrada en 1998.
83. Lozano RL, Hernández-Ceballos MA, Adame JA, Casas-Ruiz M, Sorribas M, San Miguel EG, Bolívar JP. *Radioactive impact of Fukushima accident on the Iberian*

- Peninsula: Evolution and plume previous pathway*. Environ Int. 2011; 37:1259-1264.
84. Lozano RL, Hernández-Ceballos MA, Rodrigo JF, San Miguel EG, Casas-Ruiz M, García-Tenorio R, Bolívar JP. *Mesoscale behavior of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in superficial air along the Gulf of Cadiz (south of Iberian Peninsula)*. Atmos Environ. 2013; 80:75-84.
85. Martins V, Miranda AI, Carvalho A, Schaap M, Borrego C, Sá E. *Impact of forest fires on particulate matter and ozone levels during the 2003, 2004 and 2005 fire seasons in Portugal*. Sci Total Environ. 2012; 414:53-62.
86. Masarik J, Beer J. *Simulation of particle fluxes and cosmogenic nuclide production in the Earth's atmosphere*. J Geophys Res. 1999; 104:12099-12111.
87. Mason LR, Bohner JD, Williams DL. *Airborne anthropogenic radioactivity measurements from an international radionuclide monitoring system*. J Radioanal Nucl Chem. 1998; 235:71-75.
88. Masson O, Baeza A, Bieringer J, Brudecki K, Bucci S, Cappai M, et al. *Tracking of Airborne Radionuclides from the Damaged Fukushima Dai-ichi Nuclear Reactors by European Networks*. Environ Sci Technol. 2011; 45:7670-7677.
89. Matsudaira H. *The Japanese tritium programme I. Biomedical research at NIRS, Chiba*. Radiat Prot Dosimetry. 1986; 16(1-2):9-11.
90. Mietelski JW, Baeza AS, Guillén J, Buzinny M, Tsigankov N, Gaca P, et al. *Plutonium and other alpha emitters in mushrooms from Poland, Spain and Ukraine*. Appl Radiat Isot. 2002; 56:717-729.
91. Mietelski JW, Was B. *Americium, curium and rare earths radionuclides in forest litter samples from Poland*. Appl Radiat Isot. 1997; 48:705-713.
92. Miljević N, Šipka V, Žujić A, Golobočanin D. *Tritium around de Vinca Institute of Nuclear Science*. J Environ Radioact. 2000; 48(3):303-315.
93. Nankar DP, Patra AK, Ravi Pm, Joshi CP, Hegde AG, Sarkar PK. *Studies on the rain scavenging process of tritium in a tropical site in India*. J Environ Radioact. 2012; 104:7-13.
94. National Council on Radiation Protection and Measurements. *"A handbook of radioactivity measurements procedures"*. 2<sup>a</sup> edic. Bethesda, MD:NCRP. Report No. 58. 1985.

95. National Council on Radiation Protection and Measurements. *"Tritium in the environment"*. NCRP. Report No. 62. 1979.
96. Okada S, Momoshima N. *Overview of tritium: characteristics, sources and problems*. Health Phys. 1993; 65(6):595-609.
97. Okada S. *The Japanese tritium programme II. The University programme*. Radiat Prot Dosimetry. 1986; 16(1-2):13-15.
98. Okai T, Momoshima N, Takashima Y. *Variation of atmospheric tritium concentrations in three different chemical forms in Fukuoka, Japan*. J Radioanal Nucl Chem. 1999; 239(3):527-531.
99. Paatero J, Vesterbacka K, Makkonen U, Kyllönen K, Hellen H, Hatakka J, et al. *Resuspension of radionuclides into the atmosphere due to forest fires*. J Radioanal Nucl Chem. 2009; 282:473-476.
100. Papastefanou C, Ioannidou A. *Aerodynamic size of  $^7\text{Be}$  in ambient aerosols*. J Environ Radioact. 1995; 26(3):273-282.
101. Paunescu N, Cotarlea M, Galeriu D, Margineanu R, Mocanu N. *Evaluation of environmental tritium level in preoperational period of Cernavoda CANDU Nuclear Power Plant*. J Radioanal Nucl Chem. 1999; 239(3):465-470.
102. Pham MK, Betti M, Nies H, Povinec P. *Temporal changes of  $^7\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Pb}$  activity concentrations in surface air at Monaco and their correlation with meteorological parameters*. J Environ Radioact. 2011; 102:1045-1054.
103. Piñeiro F, Ferro MA, Azahra M.  *$^7\text{Be}$  behaviour in the atmosphere of the city of Granada January 2005 to December 2009*. Atmos Environ. 2012; 47:84-91.
104. Povinec PP, Holý K, Chudý M, Šivo A, Sýkora I, Jeřkovský M, et al. *Long-term variations of  $^{14}\text{C}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the Bratislava air and implications of different atmospheric transport processes*. J Environ Radioact. 2012; 108:33-40.
105. Priller A, Berger M, Gäggeler HW, Gerasopoulos E, Kubik PW, Schnabel C, et al. *Accelerator mass spectrometry of particle-bound  $^{10}\text{Be}$* . Nucl Instrum Methods Phys Res Sec B-Beam Interaction Matter Atoms. 2004; 223-224, 601-607.
106. Radwan I, Pietrzak-Flis Z, Wardaszko T. *Tritium in surface waters, tap water and in precipitation in Poland during the 1994-1999 period*. J Radioanal Nucl Chem. 2001; 247:71-77.

107. Rangarajan R, Sarin MM. 2004. *Atmospheric deposition fluxes of  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and chemical species to the Arabian sea and bay of Bengal*. Indian J Geo-Mar Sci. 2004; 33:56-64.
108. Ruiz Gómez A. *Determinación de  $^{10}\text{Be}$  mediante espectrometría de masas con aceleradores de baja energía*. Tesina de Licenciatura, Dpto. Física Atómica y Nuclear. Universidad de Sevilla, 2007.
109. Sasaki M, Kimura H, Kudou H, Kudou T. *Concentrations of tritium in water vapor and precipitation on Mt.Hakkoda*. J Environ Radioact. 2000; 243(2):299-303.
110. SDEC France. *Operating Manual Barboteur Tritium "MARC 7000"*. Reference Document N° 9991674. Edition 07/09/2010. Comunicación privada.
111. Sheets RW, Lawrence AE. *Comparative temporal behavior of radon and thoron progeny in surface air over the Midwestern U.S.* J Radioanal Nucl Chem. 1999; 242(3):761-767.
112. Shinotsuka K, Yamanishi H, Sakuma Y, Tanaka M, Tsuji N, Uda T. *Development of an environmental atmospheric tritium monitoring system at the Toki site*. J Radioanal Nucl Chem. 2003; 258(2):233-241.
113. Sill CW. *Precipitation of actinides as fluorides or hydroxides for high-resolution alpha spectrometry*. Nucl Chem Waste Managem. 1987; 7(3-4):201-215.
114. Stamoulis K, Ioannides K, Kassomenos P, Vlachogianni A. *Tritium concentration in rainwater samples in northwestern Greece*. Fusion Sci Technol. 2005; 48:512-515.
115. Steinmann P, Zeller M, Beuret P, Ferreri G, Estier S. *Cosmogenic  $^7\text{Be}$  and  $^{22}\text{Na}$  in ground level air in Switzerland (1994-2011)*. J Environ Radioact. 2013; 124:68-73.
116. Sthol A, Seibert P, Wotawa G, Arnold D, Burkhardt JF, Eckhardt S, et al. *Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition*. Atmos Chem Phys. 2012; 12:2313-2343.
117. Strode SA, Ott LE, Pawson S, Bowyer TW. *Emission and transport of cesium-137 from boreal biomass burning in the summer of 2010*. J Geophys Res. 2012; 117, D09302, doi:(2012).10.1029/2011JD017382.

118. Sýkora I, Povinec PP, Brest'áková L, Florek M, Holý K, Masarik J. *Resuspension processes controll variations of  $^{137}\text{Cs}$  activity concentrations in the ground-level air.* J Radioanal Nucl Chem. 2012; 293(2):595-599.
119. Tokuyama H, Igarashi S. *Seasonal Variation in the Environmental Background Level of Cosmic-Ray-Produced  $^{22}\text{Na}$  at Fukui City, Japan.* J Environ Radioact. 1998; 38(2):147-161.
120. Tositti L, Brattich E, Cinelli G, Baldacci D. *12 years of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in Mt. Cimone, and their correlation with meteorological parameters.* Atmos Environ. 2014; 87:108-122.
121. UNE-EN ISO/IEC 17025: *Requisitos generales para la competencia de los laboratorios de ensayo y de calibración.* N° Referencia: ISO/IEC 17025:2005(ES). Suiza. 2005.
122. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *"Ionizing radiation: sources and biological effects"*. New York: United Nations; UNSCEAR 1982 Report. 1982.
123. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *"Sources and effects of ionizing radiation"*. New York: United Nations; UNSCEAR 1977 Report. 1977.
124. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *"Sources, effects and risks of ionizing radiation"*. New York: United Nations; UNSCEAR 1988 Report. 1988.
125. UNSCEAR. *Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation.* New York. 1988.
126. Wood MJ, McElroy RG C, Surette RA, Brown RM. *Tritium sampling and measurement.* Health Phys. 1993; 65(6):610-627.
127. Yukoni E, Kataoka T, Michihiro K, Sugiyama H, Shimizu M, Mori T. *Background levels of  $^{238}\text{U}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in atmospheric aerosols.* J Radioanal Nucl Chem. 1995; 189:157-164.
128. ZAMG (Zentralanstalt für Meteorologie und Geodynamik), 2011. Accident in the Japanese NPP Fukushima: Large emissions of Cesium-137 and Iodine-131 / Spread Radioactivity / weather currently favourable / low level radioactivity observed in Iceland. Report 24 March 2011.
129. Zanis P, Gerasopoulos E, Priller A, Schnabel C, Stohl A, Zerefos CS, et al. *An estimate of the impact of the Stratosphere-to-Troposphere Transport (STT) on the*

*lower free tropospheric ozone over Alps using  $^{10}\text{Be}$  and  $^7\text{Be}$  measurements.* J Geophys Res. 2003; 108(D12), doi:10.1029/2002JD002604.



# **Capítulo 7**

## **ANEXOS**

**Anexo I. Datos Meteorológicos de Cáceres (AEMET).**

Fecha	Dirección Viento (º)	Velocidad Viento (m/s)	Precipitación (mm)
15/03/2011	250 (WSW)	3,6	0
16/03/2011	280 (WNW)	3,9	0
17/03/2011	270 (W)	1,7	0
18/03/2011	210 (SSW)	1,4	0
19/03/2011	330 (NNW)	0,8	0
20/03/2011	120 (ESE)	1,1	0
21/03/2011	100 (ESE)	1,4	0
22/03/2011	60 (ENE)	3,3	0
23/03/2011	60 (ENE)	3,6	1,1
24/03/2011	80 (E)	4,4	9,3
25/03/2011	180 (S)	1,4	1
26/03/2011	270 (W)	3,1	1,1
27/03/2011	290 (WNW)	3,9	0,3
28/03/2011	220 (SW)	2,2	1,4
29/03/2011	270 (W)	2,8	0
30/03/2011	270 (W)	3,1	0
31/03/2011	100 (ESE)	1,4	0
01/04/2011	130 (SE)	2,8	0
02/04/2011	180 (S)	2,2	0
03/04/2011	330 (NNW)	3,6	<0,1
04/04/2011	100 (ESE)	1,1	0
05/04/2011	90 (E)	1,9	0
06/04/2011	130 (SE)	2,2	0
07/04/2011	Variable	2,2	0
08/04/2011	120 (ESE)	1,7	0
09/04/2011	250 (WSW)	2,2	0
10/04/2011	20 (NNE)	2,2	0
11/04/2011	360 (N)	1,9	0
12/04/2011	90 (E)	1,1	0
13/04/2011	90 (E)	0,6	0
14/04/2011	340 (NNW)	1,1	0
15/04/2011	20 (NNE)	1,4	0
16/04/2011	130 (SE)	2,5	0
17/04/2011	90 (E)	3,1	0
18/04/2011	200 (SSW)	2,2	1,3
19/04/2011	140 (SE)	4,2	2,2
20/04/2011	190 (SSW)	3,3	3,3
21/04/2011	120 (ESE)	3,9	8,9
22/04/2011	180 (S)	2,2	16,3
23/04/2011	90 (E)	1,1	0,2
24/04/2011	20 (NNE)	2,5	0
25/04/2011	20 (NNE)	1,7	0
26/04/2011	20 (NNE)	1,4	0
27/04/2011	60 (ENE)	1,7	0
28/04/2011	180 (S)	0,8	2
29/04/2011	180 (S)	2,8	9,4

**Anexo II. Productos volátiles más importantes de la fisión en un reactor de 3000 MWth.**

<b>Radionucleido</b>	<b>Vida-media</b>	<b>Actividad (Bq)</b>
Krypton-85	10.8 años	$2 \times 10^{16}$
Krypton-85m	4.4 horas	$1 \times 10^{18}$
Krypton-88	2.8 horas	$2 \times 10^{18}$
Xenon-133	5.3 días	$6 \times 10^{18}$
Xenon-135	9.2 horas	$1 \times 10^{18}$
Iodo-131	8.1 días	$3 \times 10^{18}$
Iodo -132	2.3 horas	$4 \times 10^{18}$
Iodo -133	21 horas	$6 \times 10^{18}$
Iodo -135	6.7 horas	$5 \times 10^{18}$
Teluro-132	3.3 días	$4 \times 10^{18}$
Cesio-134	2.1 años	$4 \times 10^{17}$
Cesio -137	30.1 años	$2 \times 10^{17}$

