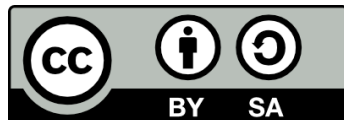




UNIVERSITAT DE
BARCELONA

Estudi per espectrometria gamma d'alta resolució de l'efecte de l'accident de la Central Nuclear de Txernòbil a Catalunya

Montserrat Llauredó i Tarragó



Aquesta tesi doctoral està subjecta a la llicència **Reconeixement- Compartigual 4.0. Espanya de Creative Commons.**

Esta tesis doctoral está sujeta a la licencia **Reconocimiento - Compartigual 4.0. España de Creative Commons.**

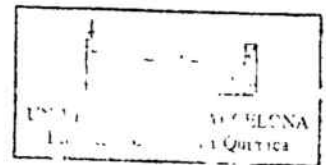
This doctoral thesis is licensed under the **Creative Commons Attribution-ShareAlike 4.0. Spain License.**

UNIVERSITAT DE BARCELONA
DEPARTAMENT DE QUÍMICA ANALÍTICA

**ESTUDI PER ESPECTROMETRIA GAMMA D'ALTA
RESOLUCIÓ DE L'EFECTE DE L'ACCIDENT DE
LA CENTRAL NUCLEAR DE TXERNÒBIL A
CATALUNYA.**

Memòria presentada per Na Montserrat Llauredó i Tarragó
per a aspirar al Grau de Doctora en Ciències Químiques.

BARCELONA, 1990



BIBLIOTECA DE LA UNIVERSITAT DE BARCELONA



0700280758

GEMMA RAURET i DALMAU, Catedràtica del Departament de Química
Analítica de la Universitat de Barcelona

CERTIFICA

Que la present memòria de títol:

"Estudi per espectrometria gamma d'alta resolució de l'efecte de
l'accident de la Central Nuclear de Txernòbil a Catalunya" ha estat
realitzada sota la seva direcció per Na Montserrat Llauredó i Tarragó
als laboratoris del Departament de Química Analítica de la Universitat
de Barcelona.

A handwritten signature in black ink, appearing to read 'Gemma Rauret', with a long horizontal flourish underneath.

BARCELONA, 1990

A la Mari

Aquest treball ha estat possible gràcies a la creació i manteniment del Laboratori de Radiologia Ambiental per part de la Universitat de Barcelona i l'Institut d'Estudis Catalans.

Alguns dels resultats presentats formen part del Projecte SPIO, subvencionat per la Corporació Metropolitana de Barcelona i el MOPU, i altres del conveni signat entre la Universitat de Barcelona i el CIEMAT pel seguiment de l'impacte de l'accident de la Central Nuclear de Txernòbil a Catalunya.

Vull expressar el meu agraïment a la Dra. Gemma Rauret per la seva dedicació en el desenvolupament d'aquesta tesi, i per la pacient atenció i l'encoratjament rebuts al llarg d'aquests anys en el Departament.

També vull agrair a la Dra. Roser Rubio l'ajuda que m'ha dispensat en tot moment i principalment en els inicis del meu treball en els aerosols atmosfèrics.

Vull agrair al Dr. Javier Tejada la seva gran ajuda i els moments dedicats a solucionar els problemes electrònics de la cadena de detecció.

Vull igualment agrair al Dr. Ramon Vallejo, a la M. Cinta i al Jaume l'ajut i els coneixements rebuts en la presa de mostra dels sòls forestals i la seva gran col.laboració en el grup de treball.

Vull agrair a en Miquel i a Na Joana la seva ajuda, col.laboració i la gran dedicació al grup de treball, doncs sense ells aquesta tesi hauria estat una tasca molt més difícil. Igualment vull agrair la col.laboració de la Margarida, del Manel i de la resta de companys del Laboratori de Radiologia Ambiental.

Vull agrair a en Josep Baró i a la Mercè i a la Isabel de l'INTE l'aclariment de dubtes, els consells i la seva ajuda desinteressada en molts moments del meu treball dins del camp de la radiologia.

Vull agrair a la Dites les facilitats obtingudes en la presa de mostra de part dels aerosols atmosfèrics.

Vull agrair al Romà, al Jaume i al Josep Lluís els ajuts informàtics obtinguts de la seva part en el programa de tractament de les dades, transferència,...

En el marc de la meva vida familiar, agraeixo als meus pares, germans i amics, l'ajut rebut en tot moment.

Finalment vull expressar el meu agraïment als companys de Departament per l'ajuda que m'han proporcionat en molts moments.

ÍNDEX

OBJECTIUS DE LA TESI	1
CAPÍTOL 1. INTRODUCCIÓ.	2
1.1 TIPUS DE RADIOACTIVITAT AMBIENTAL.	3
1.1.1 RADIOACTIVITAT NATURAL.	4
1.1.2 RADIOACTIVITAT ARTIFICIAL.	20
1.2 VIES D'INCORPORACIÓ DELS RADIONÚCLIDS EN L'HOME.	25
1.3 SISTEMES DE DETECCIÓ DE LA RADIACIÓ GAMMA.	30
CAPÍTOL 2. ESTUDI DELS PARÀMETRES INSTRUMENTALS, CALIBRATGE I TRACTAMENT DE DADES DE LES MESURES PER ESPECTROMETRIA GAMMA D'ALTA RESOLUCIÓ.	48
2.1 DESCRIPCIÓ DE LA CADENA DE DETECCIÓ.	49
2.1.1 FONT D'ALTA TENSIÓ.	60
2.1.2 FILTRE D'ALT VOLTATGE.	61
2.1.3 DETECTORS Ge(Li) I Ge INTRÍNSEC.	62
2.1.4 PREAMPLIFICADOR.	64
2.1.5 AMPLIFICADOR.	65
2.1.6 ADC-ANALITZADOR MULTICANAL.	66
2.1.7 ORDINADOR PERSONAL.	68
2.1.8 IBM 3090.	68
2.2 ESTUDI DEL FONS I BLINDATGE DEL DETECTOR DE Ge(Li).	69
2.3 CALIBRATGE I EFICIÈNCIA DEL DETECTOR DE Ge(Li).	82
2.3.1 CALIBRATGE EN ENERGIES.	83

2.3.2 CALIBRATGE EN EFICIÈNCIES.	90
2.3.2.1 Determinació experimental del calibratge en eficiències.	97
2.3.3 RESOLUCIÓ EN ENERGIES.	119
2.4 TRACTAMENT DE LES DADES. CÀLCUL DE L'ACTIVITAT.	123
2.5 BIBLIOGRAFIA.	131
CAPÍTOL 3. DETERMINACIÓ D'EMISSORS GAMMA EN ELS AEROSOLS ATMOSFÈRICS CAPTATS A L'ÀREA METROPOLITANA DE BARCELONA.	134
3.1 INTRODUCCIÓ.	134
3.2 PRESA DE MOSTRA.	142
3.3 ESTUDI DE LA GEOMETRIA EMPRADA.	144
3.4 MÈTODE ANALÍTIC.	158
3.5 RESULTATS I DISCUSSIÓ.	159
3.6 CONCLUSIONS.	171
3.7 BIBLIOGRAFIA.	172
CAPÍTOL 4. ESTUDI DEL RADIOCESI EN SÒLS DELS BOSCOS DE CATALUNYA.	178
4.1 INTRODUCCIÓ.	179
4.2 ESTUDI DE L'ACTIVITAT DE RADIOCESI EN MOSTRES DE SÒLS FORESTALS.	188
4.2.1 PRESA DE MOSTRA.	188
4.2.1.1 Material de camp emprat en la presa de mostra.	191
4.2.1.2 Presa de mostra de les parcel·les.	193

4.2.2 PREPARACIÓ DE LES MOSTRES EN EL LABORATORI.	197
4.2.4 MESURA DE L'ACTIVITAT GAMMA.	199
4.2.5 RESULTATS I DISCUSSIÓ.	200
4.3 ESPECIACIÓ DE RADIOCESI EN LES MOSTRES DE SÒL MINERAL SEGONS L'ESQUEMA DE TESSIER.	223
4.3.1 DESCRIPCIÓ DE LES MOSTRES.	225
4.3.2 PROCEDIMENT PEL TRACTAMENT DE LES MOSTRES.	226
4.3.3 RESULTATS I DISCUSSIÓ.	230
4.4 CONCLUSIONS.	237
4.5 BIBLIOGRAFIA.	241
 CAPITOL 5. MESURA DEL CONTINGUT RADIOACTIU PER ESPECTROMETRIA GAMMA D'ALTA RESOLUCIÓ EN SEDIMENTS MARINS A LA COSTA DE BARCELONA.	 249
5.1 INTRODUCCIÓ.	250
5.2 PRESA DE MOSTRA.	253
5.3 PREPARACIÓ PRÈVIA DE LES MOSTRES.	256
5.4 MÈTODE ANALÍTIC.	257
5.5 RESULTATS I DISCUSSIÓ.	259
5.6 CONCLUSIONS.	277
5.7 BIBLIOGRAFIA.	278

OBJECTIUS DE LA TESI.

Els objectius del present treball han estat:

Posar a punt la metodologia analítica per a la mesura de l'activitat gamma per espectrometria gamma d'alta resolució de diferents tipus de mostres ambientals. Amb aquest fi hom ha efectuat el calibratge en energies i el calibratge en eficiències per a les diferents geometries i densitats emprades en la mesura de l'activitat gamma, de les mostres que formen part d'aquest estudi.

L'estudi de l'efecte que en diversos compartiments del medi (atmosfera, biosfera i litosfera) ha tingut l'accident de la Central Nuclear de Txernòbil a Catalunya. Aquest estudi es compon de tres parts. En un primer capítol hom mostra l'estudi realitzat en mostres d'aerosols atmosfèrics recol·lectats durant els dies de l'accident, en un segon hom du a terme l'estudi en sòls de boscos forestals, i finalment en un altre capítol hom mostra l'estudi realitzat en sediments de la costa de Barcelona.

CAPÍTOL 1

INTRODUCCIÓ

1.1 TIPUS DE RADIOACTIVITAT AMBIENTAL.

El control del medi ambient és un dels camps en els quals la Química Analítica juga un paper primordial. Un dels grans grups de pol.luents en el medi el formen els radionúclids.

Els estudis referents a la radioactivitat ambiental requereixen que les mesures siguin de qualitat per tal d'avaluar correctament la dosi radioactiva que rep l'home a través dels diversos mecanismes i camins a través dels quals actuen els radionúclids.

Com a pas previ a la mesura de la radioactivitat cal conèixer quines són les fonts que originen els radionúclids. Aquestes fonts poden classificar-se en naturals i artificials segons llur origen.

1.1.1 RADIOACTIVITAT NATURAL.

La radioactivitat natural té diversos orígens: radiació còsmica, els radionúclids cosmogènics produïts per interacció entre aquesta radiació còsmica i l'atmosfera, i finalment els radionúclids d'origen terrestre o radionúclids primordials. Dins d'aquest últim grup podem distingir aquells que tenen vida mitjana llarga i hi són presents des de la formació de l'escorça terrestre i els que formen part de les tres cadenes radioactives: la sèrie de l'urani, on el primer element és l' ^{238}U ; la sèrie del tori, on el primer element és el ^{232}Th ; i, finalment, la sèrie de l'actini, on el primer element és l' ^{235}U . Aquestes tres famílies radioactives representen una gran part del fons radioactiu al què està exposat l'home.

Anteriorment va existir una quarta família radioactiva, la del neptuni originada pel ^{241}Pu , el qual ja no existeix degut a la seva vida mitjana relativament curta (14 anys). El radionúclid de la cadena que té una vida mitjana més llarga és el ^{137}Np tot i que només és de 10^6 anys. L'únic radionúclid que existeix pertanyent a aquesta sèrie és el ^{209}Bi amb una vida mitjana estimada al voltant de 2×10^{18} anys.

Radiació còsmica:

Són radiacions molt energètiques originades en l'espai extraterrestre i que arriben a les capes altes de l'atmosfera.

Consisteixen en un 87% de protons d'alta energia, un 11% de partícules α , al voltant d'un 1% de nuclis amb nombre atómic entre 4 i 26 i al voltant d'un 1% d'electrons molt energètics (1). Aquestes radiacions còsmiques és caracteritzen per ser molt penetrants i molt energètiques, amb una energia mitjana de 10^{10} eV essent el valor màxim de 10^{19} eV. La interacció d'aquestes radiacions amb els nuclis atmosfèrics produeixen una radiació secundària formada per electrons, raigs gamma, neutrons i mesons.

Radionúclids originats per la radiació còsmica:

Aquests radionúclids són formats a l'interaccionar la radiació còsmica amb els nuclis atmosfèrics. A la taula 1.1 (2) hom dona aquests radionúclids, llur vida mitjana, la concentració a la troposfera i les principals radiacions i energies. Els més freqüents són ^{14}C , ^3H i ^7Be , i els menys freqüents són ^{22}Na , ^{10}Be , ^{35}S , ^{32}P , ^{33}P i ^{39}Cl .

De tots ells els que més contribueixen a la irradiació dels organismes són: el ^{14}C , essent el radionúclid d'origen cosmogènic més important des del punt de vista biològic i ambiental; el ^3H , tot i que la seva contribució és negligible front a la del ^{14}C i en menor grau el ^7Be i el ^{22}Na .

El ^{14}C i el ^3H (3-7) a més d'origen natural també es troben a l'atmosfera degut a l'activitat de l'home. Hom ha observat un important

augment de l'activitat de ^3H i ^{14}C a l'atmosfera degut a les proves nuclears realitzades en aquesta al voltant dels anys 60.

A l'atmosfera el ^{14}C es troba principalment en forma de CO_2 i el ^3H en forma de vapor d'aigua. El 99% de ^3H existent en l'escorça terrestre es troba en l'aigua, formant l'aigua tritiada, essent aquesta la via normal d'incorporació als organismes vius.

Taula 1.1. Radionúclids naturals produïts pels raigs còsmics (8).

Radionuclide	Half-life	Tropospheric concentration (pCi/kg air)	Principal radiations and energies (MeV)
^3H	12 years	3.2×1.0^{-2}	β^- 0.0186
^7Be	53 days	0.28	γ 0.477
^{10}Be	1.6×10^6 years	3.2×1.0^{-8}	β^- 0.555
^{14}C	5730 years	3.4	β^- 0.156
^{22}Na	2.6 years	3.0×1.0^{-5}	β^+ 0.545, γ 1.28
^{24}Na	15.0 hr	—	β^- 1.4, γ 1.37, 2.75
^{32}P	14 days	6.3×1.0^{-3}	β^- 1.71
^{33}P	24 days	3.4×1.0^{-3}	β^- 0.246
^{35}S	88 days	3.5×1.0^{-3}	β^- 0.167
^{36}Cl	3.1×10^5 years	6.8×1.0^{-9}	β^- 0.714
^{38}S	2.87 hr	—	β^- 1.1, γ 1.88
^{38}Cl	37 min	—	β^- 4.91, γ 1.60, 2.17
^{39}Cl	55 min	—	β^- 1.91, γ 0.25, 1.27, 1.52

Pel que fa als altres radionúclids originats per les interaccions dels raigs còsmics cal dir que actualment alguns d'ells són emprats com a traçadors per tal d'estudiar els mecanismes de transport atmosfèric, però els estudis realitzats són encara molt pocs.

La distribució dels radionúclids cosmogènics varia considerablement amb l'altitud i la latitud. Els elements produïts en l'estratosfera tenen un temps mitjà de residència en ella al voltant d'un any, després passen a formar part de la troposfera on hi permaneixen unes sis setmanes. Finalment, per deposició o per precipitació passen a formar part de l'escorça terrestre. El 99% dels radionúclids cosmogènics no gasosos formen part dels sediments marins o de la litosfera.

Radionúclids d'origen terrestre o primordials:

Aquest grup de radionúclids el formen aquelles fonts de radiació que existeixen en l'escorça terrestre des dels seus orígens. Al formar-se la Terra, fa aproximadament 5000 milions d'anys, hi havia una quantitat molt més gran d'isòtops radioactius que no pas ara degut a que molts d'ells s'han desintegrat i per tant han desaparegut. Els radionúclids amb períodes de semidesintegració inferior a 10^8 anys són indetectables, mentre que els que tenen un període de semidesintegració superior a 10^{10} anys han tingut una disminució molt petita fins als nostres dies. Així doncs, els radionúclids primordials existents en l'actualitat són aquells que tenen un període de

semidesintegració de l'ordre, com a mínim, de l'edat de l'Univers (8).

El contingut de radionúclids primordials és pràcticament igual a tota l'escorça terrestre, excepte en algunes zones les quals presenten una radioactivitat molt elevada degut als alts continguts de minerals amb material radioactiu.

A la taula 1.2 (2) hom dóna els radionúclids d'origen terrestre que no formen part de cap sèrie radioactiva i algunes de llurs propietats.

De tots aquests radionúclids els principals en l'escorça terrestre des d'un punt de vista biològic i ambiental són el ^{40}K i el ^{87}Rb . La resta d'aquests radionúclids presenten uns períodes de semidesintegració molt grans i unes concentracions ambientals molt petites, la qual cosa fa que tinguin poca importància, al menys pel que fa a l'impacte radiològic ambiental.

El potassi es troba en grans quantitats i és un element essencial en tots els organismes vius. És un dels principals contribuïdors a la irradiació d'origen terrestre tant externa com internament. Els continguts de potassi en la natura són molt variables, des d'un 0.1% en les roques calcàries fins a un 3.5 % en certes roques granítiques, passant per concentracions intermitges de l'ordre de l'1 % o inferiors en les roques arenisques (9).

Taula 1.2. Radionúclids naturals d'origen terrestre (8).

Radio-nuclide	Abundance (%)	Half-Life (years)	Principal radiations: energy (MeV) and yield (%)
^{40}K	0.012	1.26×10^9	β^- 1.33, 89%
^{50}V	0.25	6×10^{15}	γ with EC 1.46, 11%
^{87}Rb	27.9	4.8×10^{10}	β^- 0.28, 100%
^{115}In	95.8	6.0×10^{14}	β^- 0.48, 100%
^{123}Te	0.87	1.2×10^{13}	EC
^{138}La	0.089	1.12×10^{11}	β^- 0.21, 80%
^{142}Ce	11.07	$>5 \times 10^{16}$	γ with EC (0.81, 1.43), 70%
^{144}Nd	23.9	2.4×10^{15}	(α)
^{147}Sm	15.1	1.05×10^{11}	α 1.83
^{148}Sm	11.27	$>2 \times 10^{14}$	α 2.23
^{146}Sm	13.82	$>1 \times 10^{15}$	—
^{152}Gd	0.20	1.1×10^{14}	—
^{156}Dy	0.052	$>1 \times 10^{18}$	α 2.1
^{174}Hf	0.163	2×10^{15}	—
^{176}Lu	2.6	2.2×10^{10}	α 2.5
^{180}Ta	0.012	$>1 \times 10^{12}$	β^- 0.43
^{187}Re	62.9	4.3×10^{10}	γ 0.089, 0.203, 0.306
^{190}Pt	0.013	6.9×10^{11}	—
			β^- 0.003
			α 3.18

El ^{40}K és un isòtop del potassi natural (0.0112% del potassi terrestre és ^{40}K) l'abundància del qual en un sòl típic és al voltant d'un 0.3 a un 1.0 % del pes i en el nostre cos és el 0.36 % del pes. Així, l'activitat específica mitjana, en l'home, és d'uns 60 Bq/Kg (8). Les concentracions màximes de ^{40}K es troben en els múscles. Això fa que l'irradiació interna del ^{40}K es distribueixi uniformement.

El ^{87}Rb està present en tots els tipus de roques i sòls amb concentracions petites. En les roques el contingut d'aquest radionúclid es troba entre 7 i 19 Bq/Kg essent les roques granítiques les que presenten un contingut més elevat. Pel que fa als sòls, aquest radionúclid presenta una activitat de l'ordre de 7 Bq/Kg. En l'home la concentració de ^{87}Rb és de 8.5 Bq/Kg (10). Aquest està relacionat amb el potassi per les seves propietats químiques.

Un altre grup de radionúclids d'origen terrestre el formen els radionúclids provinents de les sèries radioactives. Aquests radionúclids es consideren per separat ja que es desintegren donant un gran nombre de radionúclids fills. La major part dels radionúclids naturals de l'escorça terrestre provenen de les sèries naturals de desintegració. Com ja s'ha dit anteriorment els radionúclids que donen lloc a aquestes sèries radioactives són: ^{238}U , ^{232}Th i ^{235}U , tot i que els radionúclids presents en la sèrie natural de l' ^{235}U contribueixen molt poc a la irradiació deguda al fons natural (10).

A les taules 1.3, 1.4 i 1.5 hom dóna els radionúclids corresponents a les sèries radioactives naturals de l'urani, tori i actini respectivament, així com llurs propietats.

En la natura, l' ^{235}U i alguns altres radionúclids de l'urani i del tori, experimenten fissió espontàniament o com a conseqüència d'interaccions amb neutrons que són originats pels raigs còsmic o altres fonts naturals. Així, l' ^{238}U , tot i que com a primer element d'una de les sèries radioactives naturals dóna una sèrie de radionúclids, també pot donar altres radionúclids per fissió espontània (per exemple l' ^{90}Sr). No obstant això, les concentracions d'aquests radionúclids en la natura són molt petites i per tant la irradiació que poden produir és pràcticament negligible.

L'urani es troba en els sòls i en totes les roques i minerals. Com més àcides són les roques més elevada és la concentració d'urani (des de 3.0 ppm en ígnies àcides fins a 0.03 ppm en ígnies molt bàsiques). Dins de les roques ígnies les granítiques presenten unes de les concentracions més elevada (4 ppm) i els fosfats minerals són els que tenen les concentracions màximes (20-120 ppm), reflexant-se això en l'elevat contingut d'urani de molts fertilitzants comercials amb fosfats. Les roques sedimentàries, generalment, tenen un contingut radioactiu més baix tot i que algunes pissarres són sumament radioactives.

Taula 1.3. Radionúclids de la sèrie de l'urani (8).

Isotope	Relative isotopic abundance (%)	Half-life	Radiation	Energy (MeV)	Percent yield	
²³⁸ U	99.28	4.5 × 10 ⁹ years	α	4.20	75	
				4.15	23	
²³⁴ Th	—	24 days	γ	0.048	23	
				β	0.192	65
					0.100	35
^{234m} Pa	—	1.2 min	β	0.092	4.0	
				γ (IT)	—	(doublet)
					2.29	98
					1.53	<1
				²³⁴ U	0.0057	2.5 × 10 ⁵ years
0.39	0.13					
γ	0.817	4				
4.77	72					
²³⁰ Th	—	8.0 × 10 ⁴ years	α	4.72	28	
				0.093	5	
				4.68	76	
²²⁶ Ra	—	1622 years	α	4.61	24	
				γ	4.51	0.35
					0.068	0.6
					0.253	0.02
				²²² Rn	—	3.8 days
4.59	5.7					
0.186	4					
²¹⁸ Po	—	3.05 min	α	0.26	0.007	
				5.48	100	
²¹⁴ Pb	—	26.8 min	β	0.510	0.007	
				6.0	99+	
²¹⁴ Bi	—	19.7 min	β	0.72	100	
				γ	0.053	1.6
					0.242	4
					0.295	19
				²¹⁴ Po	—	1.64 × 10 ⁻⁴ sec
6.70	94					
6.65	6					
²¹⁴ At	—	1.5–2.0 sec	α	3.26	19	
				1.51	40	
				1.00	23	
				5.52	0.008	
²¹⁰ Pb	—	22 years	β	5.45	0.011	
				5.27	0.001	
				7.68	100	
²¹⁰ Bi	—	5.0 days	β	0.799	0.014	
				γ	0.799	0.014
²¹⁰ Po	—	138 days	α	1.9	56	
				1.3	25	
				2.3	19	
				0.296	80	
²¹⁰ Tl	—	4.2 min	β	0.795	100	
				1.31	21	
				0.015	81	
²⁰⁶ Pb	25.2	Stable	—	0.061	19	
				0.0465	4	
²⁰⁶ Bi	—	5.0 days	β	1.17	99+	
				α	5.0	5 × 10 ⁻⁴
²⁰⁶ Po	—	138 days	α	5.3	100	
				γ	0.80	0.0011
²⁰⁶ Tl	—	4.2 min	β	1.51	100	
²⁰⁶ Pb	25.2	Stable	—	—	—	

Taula 1.4. Radionúclids de la sèrie del tori (8).

Isotope	Relative isotopic abundance (%)	Half-life	Radiation	Energy (MeV)	Percent yield	
²³² Th	100	1.4 × 10 ¹⁰ years	α	4.01	76	
				3.95	24	
				0.055	24	
²²⁸ Ra	—	6.7 years	β	0.055	100	
²²⁸ Ac	—	6.13 hr	β	2.18	10.0	
				1.85	9.6	
				1.72	6.7	
				1.11	53.0	
				0.64	7.6	
				0.46	13	
				γ	0.058	53.0
				0.129	5.2	
				0.184	<1	
				0.184	<1	
²³² Th	—	1.9 years	α	5.42	71	
				5.34	28	
				0.083	1.6	
²²⁸ Ra	—	3.64 days	α	5.68	94	
				5.45	6	
				5.19	0.4	
²²⁸ Rn	—	55 sec	γ	0.241	3.7	
				α	6.28	100
				γ	0.50	0.07
²¹⁴ Po	—	0.16 sec	α	6.77	100	
²¹⁴ Pb	—	10.6 hr	β	0.33	~88	
				0.57	~12	
				γ	0.176	<1
				0.238	47	
				0.300	3.2	
				β	2.25	64
				α	6.086	9.8
²¹⁴ Bi	—	60.5 min	β	6.047	25.1	
				γ's with β	1.81	1.0
				1.61	1.8	
				1.03	2	
				0.83	13	
				0.72	7	
				γ's with α	0.040	2
				0.288	0.5	
				0.46	0.8	
					(complex)	
²¹⁴ Po	—	3.04 × 10 ⁻⁷ sec	α	10.55	<1	
²¹⁴ Pb	—	3.1 min	β	8.785	99	
				γ	1.80	100
				2.61	100	
				0.86	12	
				0.58	86	
²¹⁰ Pb	52.3	Stable	—	0.51	23	
				—	—	

Taula 1.5. Taula de la sèrie de l'actini (8).

Isotope	Relative isotopic abundance (%)	Half-life	Radiation	Energy (MeV)	Percent yield
^{235}U	0.72	7.1×10^8 years	α	4.32	3
				4.21	5.7
				4.58	8
					(doublet)
				4.5	1.2
			4.4	57	
			4.37	18	
			γ	0.110	2.5
				0.143	11.0
				0.163	5.0
0.185	54.0				
0.205	5.0				
^{231}Th	—	25.64 hr	β	0.302	52
				0.218	20
				0.138	22
			γ	0.026	2
				0.085	10
					(complex)
^{231}Pa	—	3.25×10^4 years	α	5.00	24
				4.94	22
				5.02	23
			γ	5.05	10
				0.027	6
				0.29	6
^{227}Ac	—	21.6 years	β	0.046	99
				4.95	1.2
				(doublet)	
^{227}Th	—	18.2 days	γ	0.070	0.08
				6.04	23
			α	5.98	24
				5.76	21
				5.72	14
					(doublet)
			γ	0.050	8
				0.237	15
	(complex)				
	0.31	8			
	(complex)				

Taula 1.5. Continuació.

Isotope	Relative isotopic abundance (%)	Half-life	Radiation	Energy (MeV)	Percent yield
^{223}Fr	—	22 min	β	1.15	99+
			α	5.35	4×10^{-3}
			γ	0.050	40
				0.080	13
^{223}Ra	—	11.4 days	α	0.234	4
				5.75	9
				5.71	54
				5.61	26
			γ	5.54	9
				0.149	10
					(complex)
	0.270	10			
	0.33	6			
^{219}Rn	—	4.0 sec	α	6.82	81
				6.55	11
				6.42	8
			γ	0.272	9
				0.401	5
					(complex)
^{215}Po	—	1.77×10^{-3} sec	α	7.38	99+
			β	—	2.3×10^{-4}
^{211}Pb	—	36.1 min	β	1.36	92
				0.95	1.4
				0.53	6
			γ	0.405	3.4
				0.427	1.8
				0.832	3.4
^{214}At	—	$\sim 10^{-4}$ sec	α	8.00	100
^{211}Bi	—	2.16 min	α	6.62	84
				6.28	16
			β	—	0.27
^{211}Po	—	0.52 sec	γ	0.35	14
			α	7.45	99
				6.89	0.5
			γ	0.57	0.5
				0.90	0.5
^{207}Tl	—	4.79 min	β	1.44	100
			γ	0.870	0.16
^{207}Pb	21.7	Stable	—	—	—

Degut a la presència de l'urani en el sòl i en molts fertilitzants, aquest es troba també en els aliments i en els teixits de l'home.

Pel que fa al contingut d'urani en l'aire hom ha trobat que està correlacionat amb la concentració de partícules en suspensió (11). Les principals fonts són el sòl transportat per l'aire i les cendres procedents de les combustions de materials que contenen urani. L'urani es troba també en molts productes comercials.

La concentració d' ^{238}U i ^{235}U a la litosfera és al voltant de 2.8 ppm, la qual varia segons el tipus de sòl.

Un dels radionúclids degut a la desintegració de l' ^{238}U és el ^{226}Ra , amb una vida mitjana llarga (1620 anys), el qual és el responsable d'una gran fracció de la dosi rebuda per l'home. Aquest radionúclid és un emissor α que decau a ^{222}Rn el qual dóna una sèrie de productes de desintegració que són emissors α , β i alguns gamma amb una vida mitjana llarga com és el cas del ^{210}Pb . El ^{226}Ra es troba en els sòls, roques i minerals; a través del sòl poden passar a l'aigua i finalment als aliments. Químicament és similar al Ca i és captat per les plantes a través del sòl passant finalment a la cadena alimentària incorporant-se així a l'esquelet humà.

El ^{232}Th es troba també en els sòls, roques i minerals. Cal

destacar que aquest és molt abundant en certes roques del Brasil i de la India, on les dosis produïdes per a aquest radionúclid són molt elevades.

La principal via d'incorporació del ^{232}Th és per inhalació de les partícules de sòl en suspensió. La seva eliminació del cos és molt lenta la qual cosa fa que la concentració d'aquest radionúclid augmenti amb l'edat.

Tot i que les dosis produïdes per l' ^{238}U , l' ^{235}U i pel ^{232}Th són negligibles, comparades amb les produïdes pel ^{40}K , aquests tenen molta importància degut a les emissions de radó com a conseqüència de llur desintegració radioactiva (formació de radionúclids naturals secundaris).

Els radioisòtops del radó són: ^{219}Rn , ^{220}Rn i ^{222}Rn . Aquest com a gas noble que és, és químicament inert. Es forma per desintegració del radi i es difon lliurement a través de les porositats dels materials que contenen urani tals com sòls, roques, sorres, materials de la construcció, etc.

La major part del radó que hi ha a l'aire és el ^{222}Rn el qual és producte de la desintegració del ^{238}U . El seu període radioactiu (el qual és de 3.8 dies) és suficientment llarg com per a tenir una difusió significativa a l'atmosfera. La concentració de Rn a l'atmosfera depèn:

del contingut de Ra en el sòl, de la porositat de les roques i del sòl, i de l'estat físic del sòl (saturació d'aigua, gel, neu, ...). La concentració d'aquest radionúclid en les capes baixes de l'atmosfera depèn, a més a més de la naturalesa del sòl, de les propietats de difusió de l'atmosfera (vents, turbulència vertical). En les planes continentals, l'activitat del Rn al nivell del sòl oscil·la entre 2 i 10 Bq m³ decreixent exponencialment amb l'altitud.

Els fills radioactius del Rn contribueixen a la dosi tant o més que el propi gas, ja que aquests són atrapats pels aerosols atmosfèrics i poden passar així a través de les vies respiratòries. Com ja hem dit anteriorment el Rn s'escapa dels materials de construcció i a través del sòl, contribuint a que la concentració d'aquest radionúclid en llocs tancats i sense ventilació sigui de 10 a 100 vegades més gran que en llocs a l'aire lliure.

Es podria pensar que hi hagués un cert equilibri entre els radionúclids descendents de les cadenes radioactives naturals i els seus precursors. Això no és així, degut principalment al diferent comportament químic entre els elements i a l'estat físic en què es troben. Així, per exemple, el radó com a gas tendeix a difondre's des del medi a on es troba cap a l'aire o un altre medi (aigua) trencant-se l'equilibri que el Ra i el Rn tenien en el medi inicial. Així també, pel que fa al comportament químic, en els manantials de roques

granítiques el ^{226}Ra hauria d'estar en equilibri amb l' ^{238}U . Però la solubilitat del primer és molt més gran que la del segon. Així una part important del radi format en la part superficial de la roca és solubilitzat per l'aigua trencant-se l'equilibri entre aquests dos radionúclids tant en l'aigua com en la part superficial de la roca. Pel que fa als sòls, segons quina sigui la solubilitat dels radionúclids seran més o menys fàcilment rentats per l'aigua, ja sigui aigua de pluja, rec, etc. Degut a aquesta facilitat de solubilitzar-se, el radi pot ser fàcilment asimilat per les plantes. En general, la incorporació de certs radionúclids per les plantes fa que es trenquin els equilibris de les sèries radioactives naturals en els sòls i en les pròpies plantes.

1.1.2 RADIOACTIVITAT ARTIFICIAL.

L'activitat de l'home ha contribuït per una part a augmentar la concentració en el medi ambient d'alguns dels radionúclids naturals tals com el ^{14}C , ^3H entre altres i per l'altra ha introduït quantitats de radionúclids artificials.

Des del descobriment de la radioactivitat artificial, l'home produeix varis centenars de radionúclids destinats a diferents propòsits, tals com: la medicina, la producció d'energia, l'armament militar i la investigació entre altres.

Les fonts de radioactivitat artificial són totes elles producte d'alguna activitat humana. Aquestes poden classificar-se en:

- Radionúclids originats per les explosions nuclears realitzades a l'atmosfera.
- Radionúclids provinents del funcionament o bé de les deixalles de materials radioactius de les instal·lacions radioactives i nuclears en funcionament normal.
- Emissions de productes radioactius originats en situacions accidentals d'instal·lacions nuclears o radioactives.

Els radionúclids originats per les explosions nuclears realitzades

a l'atmosfera per Estats Units, Rússia i Anglaterra fins el 1962 i per França i Xina més tard, varen produir un fort augment en el fons radioactiu de la Terra. En aquest tipus de proves poden originar-se un gran nombre de radionúclids. Poden formar-se més de 200 productes de fissió, dels quals tenen més importància, des del punt de vista ambiental, els que poseeixen una vida mitjana llarga tals com: ^{106}Ru , ^{140}Ba , ^{144}Ce , ^{89}Sr , ^{131}I , ^{134}Cs i ^{137}Cs principalment. També poden formar-se productes d'activació tals com: ^3H , ^{14}C , ^{54}Mn i ^{55}Fe . I finalment poden produir-se elements transurànids tals com: ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{239}Np i ^{241}Am , entre altres.

Referent a la segona font de radioactivitat artificial citada, podem dir que tot procés involucrat en la manipulació de material radioactiu pot ocasionar una contaminació del medi. Així, durant l'extracció i el tractament del mineral i la fabricació del combustible nuclear, a partir de l'urani, es formen quantitats de pols de radionúclids naturals, tals com ^{238}U , ^{234}U , ^{230}Th , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{210}Po i ^{222}Rn tots ells pertanyents a la sèrie natural de l' ^{238}U , que poden passar al medi augmentant així llurs concentracions en aquest.

També, en les plantes dels reactors nuclears poden aparèixer efluents radioactius de productes de fissió i d'activació degut a pèrdues per corrosió, per desgats, etc. en els sistemes de refrigeració, passant així tot una sèrie d'elements radioactius al medi. Aquests efluents

radioactius poden classificar-se en (14):

Efluents gasosos.

- Gasos nobles de fissió: tals com els isòtops radioactius de ^{85}Kr , i ^{133}Xe ;
- Gasos d'activació: ^{16}N , ^{41}Ar i ^{35}S ;
- ^3H ;
- ^{14}C ;
- Radioiodes: ^{129}I , ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I i ^{135}I ;

Efluents líquids.

- ^3H ;
- Productes de fissió i d'activació: ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{129}I , ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I i ^{135}I .

Partícules suspeses en l'aire.

Tals com: ^7Be , ^{22}Na , ^{24}Na , ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{56}Mn , ^{59}Fe , ^{57}Co , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{65}Zn , ^{76}As , ^{88}Rb , ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{91}Sr , ^{95}Zr , ^{97}Zr , ^{95}Nb , ^{99}Mo , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{103}Ru , ^{105}Ru , ^{106}Ru , $^{108\text{m}}\text{Ag}$, $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{113}Sn , $^{111\text{5}}\text{Cd}$, ^{122}Sb , ^{124}Sb , ^{125}Sb , $^{123\text{m}}\text{Sn}$, $^{123\text{m}}\text{Te}$, ^{132}I , ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs , ^{139}Ce , ^{140}Ba , ^{140}La , ^{141}Ce , ^{144}Ce i ^{182}Ta .

També podem citar les plantes de reprocessament de material radioactiu en les que es manipula una gran quantitat de productes de fissió; les plantes o laboratoris calents destinats a la producció d'isòtops

radioactius emprats en altres camps com per exemple la medicina, esterilització de productes alimentaris i la investigació entre altres.

Tots aquests processos anteriorment citats poden produir una contaminació radioactiva al medi en situacions no accidentals de treball.

Per altra part, durant els 45 anys d'història de l'indústria nuclear tot una sèrie d'accidents ha contribuït a la contaminació del medi ambient. Cal citar com a fonts radioactives artificials de contaminació a l'atmosfera les explosions termonuclears a l'Oceà Pacífic (Illa Bikini, 1954), i la resta de proves d'armament nuclear realitzades al voltant dels anys seixanta, citades anteriorment, a l'atmosfera. Pel que fa a aquestes proves nuclears es detecten en les anàlisis realitzades en mostres d'aire dos pics d'activitat gamma, un entre 1954-1959 i un altre entre 1961-1962, corresponents als augments d'activitat del fons radioactiu degut a aquestes proves. Cal citar també els accidents que han tingut lloc en plantes de producció de plutoni com es el cas de l'accident de Windscale (actualment Sellafield, 1957) o a Colorado (1969); i la resta d'accidents nuclears que han tingut lloc arreu del món, tals com: el produït per una explosió química en la planta de descontaminació radioactiva de Oak Ridge (1959), el del reactor nuclear a l'Illa de les Tres Milles (1979), el satelit soviètic Cosmos 954 sobre el Canadà (1978), i finalment, el més recent, el del reactor de la Central Nuclear soviètica de Txernòbil (1986).

El "fallout" o fons radioactiu existent en el medi conté varis radionúclids, indicats anteriorment, però solament alguns d'ells contribueixen d'una forma més important a l'irradiació rebuda per l'home. Aquests són en ordre d'importància: ^{14}C , ^{137}Cs , ^{90}Sr i ^{137}Cs .

1.2 VIES D'INCORPORACIÓ DELS RADIONÚCLIDS EN L'HOME.

Tant les fonts de radioactivitat naturals com les fonts de radioactivitat artificials poden afectar a l'home per camins molts diferents.

A la figura 1.1 i 1.2 hom representa les principals vies d'incorporació dels radionúclid. Si inicialment el contaminat radioactiu es troba en l'aire (figura 1.1) aquest pot produir una contaminació externa per radiació directa i una contaminació interna per inhalació, ja sigui per inhalació directa del material radioactiu per l'home o bé per la inhalació pels animals a través dels quals passa a l'home per la ingestió de carn i llet. Aquest material radioactiu pot depositar-se, ja sigui per deposició seca o bé per deposició humida, sobre els cultius i les plantes i finalment per ingestió passar a ser una font de contaminació interna per a l'home. Pot depositar-se també sobre el sòl i ser una font de radiació directa, és a dir externa, per a l'home o bé interna a través de la ingestió de productes animals i vegetals.

Si el contaminant radioactiu es deposita sobre el sòl o sobre les aigües superficials (figura 1.2) pot passar a ser una font de radiació directa per a l'home i els animals, i a la vegada una font de radiació interna ja que a través del sòl poden contaminar-se les plantes i ésser ingerides per l'home i a través de les plantes passar als animals els

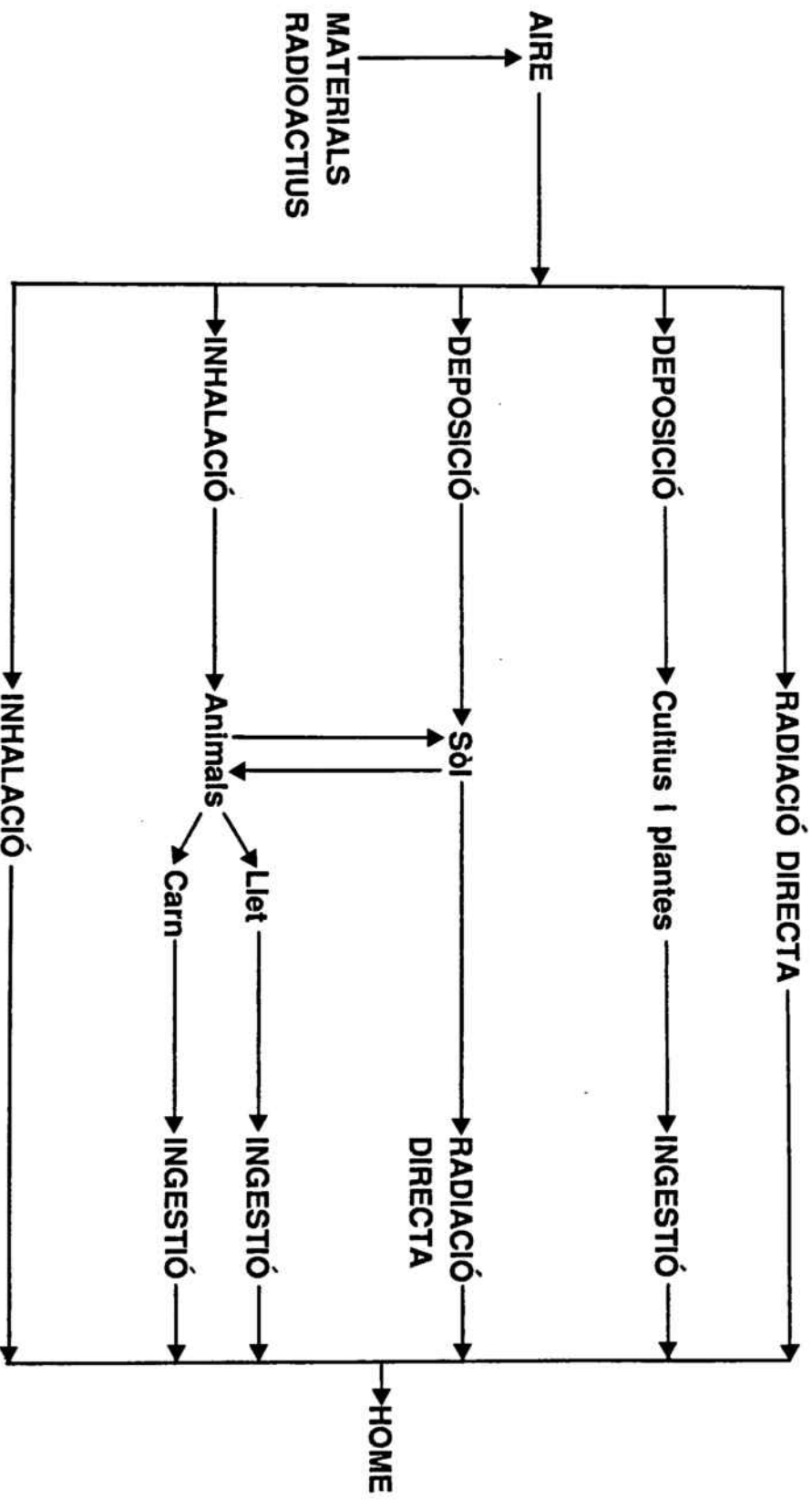


Figura 1.1. Diferents camins d'irradiació interna i externa deguts als materials radioactius alliberats a l'atmosfera.

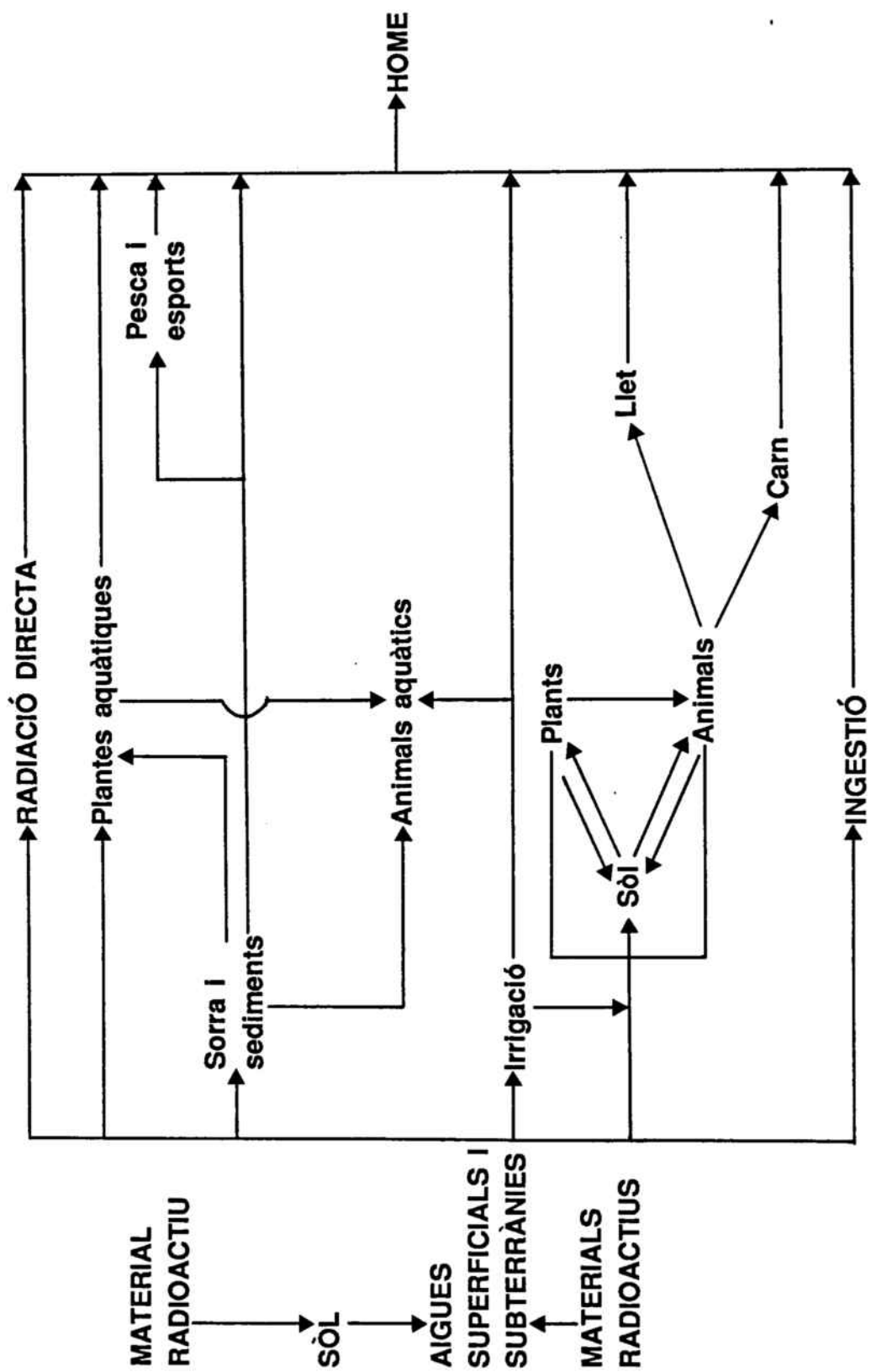


Figura 1.2. Diferents camins d'irradiació interna i externa deguts als materials radioactius alliberats sobre el sòl i les aigües superficials.

quals també per ingestió passen finalment a l'home. El material radioactiu pot resuspendre's ja sigui per acció del vent o per acció del home, podent ser inhalat per l'home i els animals o bé depositat sobre les plantes.

Aquesta deposició sobre les plantes és l'inici de la contaminació de la cadena alimentària. La transferència de radionúclids a través de les diferents baules d'aquesta cadena respon a mecanismes complexos que fa difícil avaluar el risc al qual pot estar sotmès l'home.

Al depositar-se el material radioactiu sobre les aigües superficials aquestes poden ser una font d'irradiació interna per a l'home mitjançant la ingestió alhora que també és una font externa per radiació directa. Per irrigació, al emprar l'aigua, pot contaminar-se el sòl i per tant els animals i les plantes i finalment arribar a l'home. A través de l'aigua també poden contaminar-se les plantes aquàtiques, els peixos, les sorres i els sediments, i finalment per ingestió o per irradiació, per exemple per la pràctica de la pesca i d'esports aquàtics, poden actuar sobre l'home.

A la figura 1.3 (12) hom mostra el percentatge de les diferents fonts radioactives, tant naturals com artificials, que contribueixen a la irradiació rebuda per l'home.

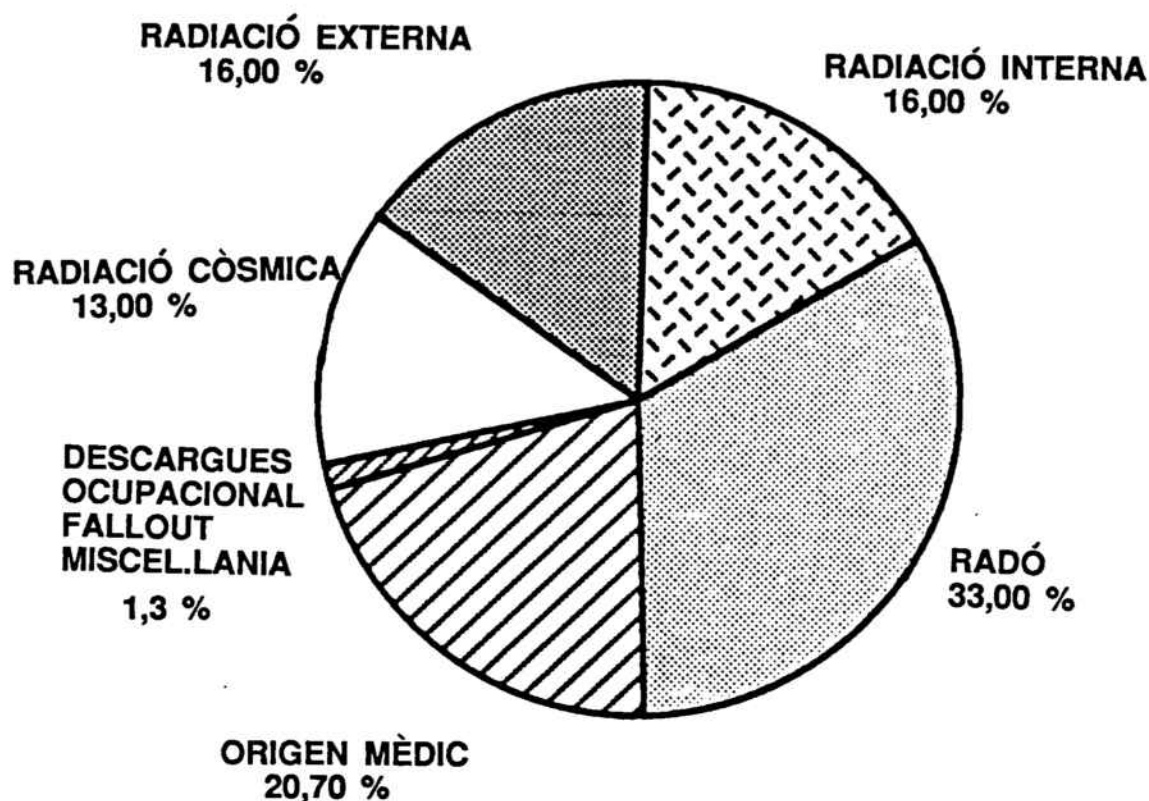


Figura 1.3. Contribució de les principals fonts de radiació a la irradiació de la població en general.

Tal com es pot veure la dosi més gran que rep l'home és deguda a les fonts de radioactivitat naturals i a continuació són les fonts mèdiques les que contribueixen en major percentatge a la dosi rebuda per radiació artificial (diagnosi o teràpia). Obviament, la dosi individual deguda a les fonts mèdiques varia des de zero fins a milers de vegades la dosi rebuda anualment per radiació natural.

1.3 SISTEMES DE DETECCIÓ DE LA RADIACIÓ GAMMA.

Actualment, els estudis de radioactivitat ambientals i la utilització de radiacions ionitzants amb diferents propòsits, fa que sigui necessària la mesura qualitativa i quantitativa d'aquests tipus de radiació.

Aquestes radiacions gamma no són directament perceptibles per l'home i requereixen d'una instrumentació adequada per tal d'ésser detectades. Aquests equips de detecció reben el nom genèric de **detectors**.

Els electrons alliberats per qualsevol dels tres processos d'interacció dels fotons amb la matèria (efecte fotoelèctric, efecte Compton i formació de parells) que arriben a la zona sensible del detector, produeixen de forma indirecta excitacions i ionitzacions les quals són transformades en impulsos elèctrics fàcilment detectables per la cadena de detecció acoblada al detector.

Per a la mesura espectromètrica de la radiació gamma poden emprar-se dos tipus de detectors: detectors de centelleig, bàsicament NaI (TI) o detectors de semiconductor, bàsicament de Ge(Li) o Ge intrínsec.

1.3.1 DETECTORS DE CENTELLEIG.

La detecció de la radiació mitjançant el centelleig que produeixen alguns materials, és una de les tècniques més antigues de detecció. Actualment segueix essent emprada per a la detecció i espectrometria de radiacions ionitzants i per tant en la detecció i espectrometria de la radiació gamma.

Els centellejadors són materials que produeixen luminiscència quan una radiació ionitzant els atravesa. Essent petita la quantitat de llum produïda en un centellejador, cal que sigui ampliada mitjançant un fotomultiplicador. Aquests centellejadors han de tenir una gran eficiència d'absorció de l'energia de la partícula o fotó a detectar i de conversió d'aquesta energia absorbida en energia lluminosa.

Els centellejadors més emprats són o bé cristalls inorgànics o bé compostos orgànics ja sigui en forma cristal·lina o en dissolució.

Les característiques fonamentals dels detectors de centelleig són l'alta eficiència de detecció i la gran rapidesa de resposta.

1.3.1.1 Centellejadors inorgànics.

La majoria són cristalls de metalls alcalins amb impureses en petites concentracions. Exemples en són: NaI(Tl), CsI(Tl), LiI(Eu), etc.

La impuresa, o **agent activador**, és la responsable de la luminiscència.

La radiació ionitzant passa a través del cristall, amb la qual cosa els electrons poden passar de la banda de valència a la de conducció, amb creació de forats electrònics en la primera. També es poden crear "excitons" quan l'electró arriba a una banda d'excitació de menor energia que la de conducció, quedant-se unit electrostàticament a la banda de valència, formant-se un parell electró-forat.

Les imperfeccions o impureses del cristall creen estats energètics entre les bandes de conducció i de valència. Mitjançant l'absorció d'un fotó, la captura d'excitons o d'un parell electró-forat, poden passar de l'estat fonamental a estats excitats. La desexcitació de la impuresa dóna lloc a l'emissió de fotons que, si tenen una energia que correspon a l'espectre visible, contribuiran al centelleig.

La majoria dels fotons emesos són deguts a transicions dels àtoms activadors, havent-hi una primera transferència energètica del

crystal·l a la impuresa.

El centellejador sòlid més emprat és el de NaI(Tl). La seva alta densitat i l'alt volum que pot arribar a assolir el crystal·l, li permeten tenir una alta eficiència. Presenta problemes per les seves propietats higroscòpiques i és de gran sensibilitat a canvis de temperatura.

1.3.1.2 Centellejadors orgànics líquids.

Els centellejadors orgànics estan compostos de mescles binàries o ternàries de compostos aromàtics. El component amb la màxima concentració és el solvent. Els altres són soluts (primaris o secundaris):

La producció de llum és el resultat de transicions moleculars entre l'estat fonamental i estats excitats provocades per la radiació ionitzant incident.

La relaxació de les molècules cap a l'estat excitat de menor energia provoca l'emissió de fotons d'energia menor que la causant de l'excitació.

D'entre els centellejadors líquids, els orgànics són els més emprats (antracè, estilbè, terfenil). Consisteixen en la mescla d'un

solvent amb un o més soluts.

- Sistema binari: la radiació incident cedeix tota la seva energia al solvent. La luminiscència és deguda al solut, després d'una transferència energètica del solvent al solut.
- Sistema ternari: hi ha un desplaçament de la longitud d'ona cap a energies més baixes.

En ambdós casos cal l'ús d'un tub fotomultiplicador.

Tenen una menor eficiència que els de NaI(Tl). Són poc sensibles per a la detecció de la radiació gamma. Són útils en cas de la detecció de partícules beta en presència d'un camp de radiació gamma moderadament intens.

En general, els **detectors de centelleig** són útils quan la resolució en energies no és el factor més important de la mesura, essent menys emprats que els detectores de semiconductors.

1.3.2 DETECTORS DE SEMICONDUCTORS.

Els detectors semiconductors en estat sòlid treballen com a cambres d'ionització, però amb electrons i "forats" com a portadors de càrrega. La interacció provoca parells electró-forat al llarg del recorregut de la partícula carregada a través del detector. L'aplicació d'un camp elèctric permet generar el senyal elèctric corresponent.

Un sòlid semiconductor presenta un pas nul de corrent a baixes temperatures (a prop del zero absolut) sota l'acció de qualsevol voltatge. Els electrons no s'hi poden moure. A mesura que la temperatura augmenta, els electrons comencen a moure's, podent circular corrent a potencials moderats.

En un semiconductor, la banda de valència està plena i la de conducció buida, amb una diferència d'energia petita entre els dos estats energètics (E_g). Per un augment de temperatura, per absorció de radiació o per col·lisió amb partícules carregades, alguns electrons obtenen suficient energia per a arribar a la banda de conducció, deixant un forat en la de valència. Aquest forat es comportarà com una partícula amb càrrega positiva. En un semiconductor pur i elèctricament neutre, el nombre de forats i d'electrons fóra el mateix.

Després d'un cert temps (10^{-12} s) i diferents salts electrònics, els

electrons i els forats es concentren en la banda de conducció més baixa i en la banda de valència més alta, respectivament. Aquesta situació fa que l'energia necessària per a la creació d'un nou parell electró-forat sigui més gran que l'energia E_g inicial. En absència de camp elèctric hi hauria una recombinació dels electrons i els forats, tornant el cristall al seu estat neutral original.

Pel que fa als diferents tipus de semiconductors, la classificació es fa segons la presència o no d'impureses.

1.3.2.1 Semiconductors Impurs o extrínsecs.

Són materials semiconductors als quals s'han introduït impureses (es dopen). Segons quines siguin aquestes impureses els detectors poden ser de tipus n (impureses donadores, contribueixen a l'existència d'electrons en la banda de conducció) o p (impureses acceptores, creen posicions pels electrons en la zona prohibida).

En els semiconductors extrínsecs o "dopats" el contingut d'impureses està perfectament controlat i augmenta la conductivitat en alguns ordres de magnitud. Exemples en són Ge(Li), Si(Li), etc.

1.3.2.2 Semiconductors intrínsecs.

Són materials semiconductors molt purs. El Si i el Ge són els que es poden obtenir amb una gran puresa. L'agitació tèrmica provoca que hi hagi electrons en la banda de conducció i forats en la de valència. Aquestes condicions fan que el nombre d'electrons i forats siguin idèntics.

Unió p-n.

En un cristall de Si o Ge cada electró de valència forma un enllaç covalent amb l'àtom veí. Si es reemplaça un dels àtoms tetravalents per un pentavalent (impuresa d'As, per exemple), queda un electró lliure capaç de passar, amb poca energia, a la banda de conducció. La conductivitat del semiconductor serà deguda principalment als electrons: semiconductor de tipus-n. La impuresa serà, doncs, donadora d'electrons.

Si la impuresa és trivalent, pot acceptar electrons dels àtoms tetravalents, creant-se forats i estats energètics en la banda de valència. La impuresa serà acceptora i els portadors de càrrega bàsicament positius: semiconductor de tipus-p.

Si hom junta dos semiconductors dels dos tipus i hi aplica un camp elèctric, els electrons i els forats es mouran en direccions

oposades, degut a un gradient de concentració. Sense l'acció d'un camp extern, hi haurà una difusió que arribarà a superar l'original equilibri de càrregues: la regió de tipus-n quedarà carregada positivament i la de tipus-p, negativament, establint-se una diferència de potencial, coneguda com a unió p-n, que s'oposa a la difusió dels dos tipus de portadors a través de la unió: al voltant de la unió p-n no hi haurà portadors.

En realitat no s'aconsegueix una unió p-n juntant dos semiconductors, sinò que es comença amb un semiconductor d'un tipus, transformant un extrem en l'altre tipus.

La unió p-n és la zona sensible a la radiació incident, ja que aquesta hi crea parells electrons-forats que, sota l'acció d'un camp elèctric, són recollits abans que es combinin entre ells i convertits en impulsos elèctrics. La recol·lecció es fa en un temps molt petit (10^{-7} s).

Poden haver-hi pèrdues en la recol·lecció, sobretot degudes a imperfeccions del cristall que, a més a més, pateix successius danys per la radiació rebuda.

1.3.2.3. Detectores de semiconductors extrínsecs.

Detectores de barrera de superfície.

Formats per Si d'alta puresa i de tipus-n. Oxidat superficialment, s'hi forma una capa de tipus-p. Una fina capa d'Au serveix com a contacte elèctric.

Detectores d'unió difusa.

Formats per Si d'alta puresa i de tipus-p. Addicionant superficialment compostos de P i escalfant, es difonen i donen lloc a una fina capa de tipus-n.

Tant en els cas dels detectors de barrera de superfície com en el cas dels detectors d'unió difusa cal que la grandària de la unió p-n sigui de l'ordre de la partícula incident: s'aconsegueixen longituds de fins 2mm, permetent mesurar fotons de menys de 1.2 MeV.

Detectores "dopats" amb Li.

Difonent Li (àtom donador amb alta mobilitat) a través de cristalls de Ge o Si de tipus p, s'aconsegueixen longituds de zona sensible superiors a les dels detectors de barrera de superfície o a les dels detectors d'unió difusa: fins 5 mm per Si(Li) i 12 mm per Ge(Li). La unió elèctrica també depèn del tipus de detector. Per un Si(Li) sol ser Al o Au(B) (tipus p) i Au o Sb(Au) (tipus n). En cas de Ge(Li) pot ser

una deposició d'Au o mescles Hg/In, Ga/In, etc.

Quan la difusió comença, la concentració d'àtoms acceptors és constant al llarg del cristall, essent la d'àtoms donadors alta en la superfície i nul·la en la resta del cristall. A mesura que el procés de difusió tèrmica té lloc, va canviant la concentració dels àtoms donadors.

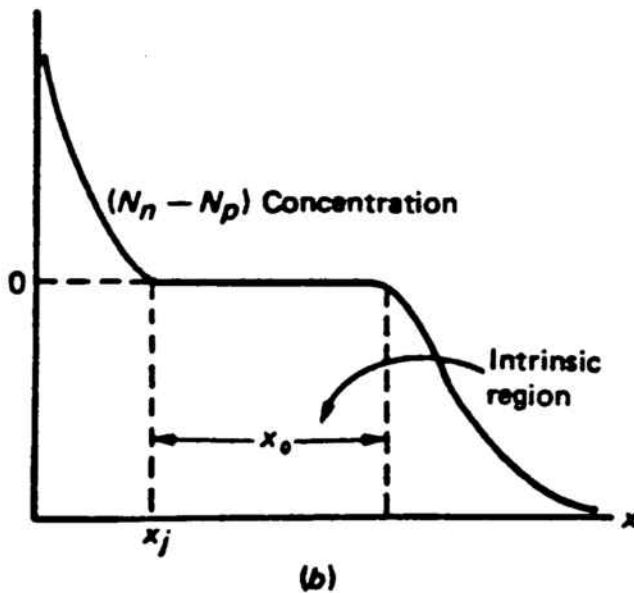
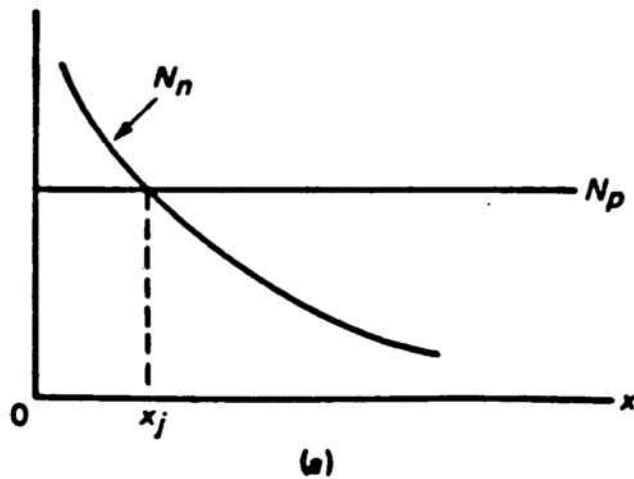


Figura 1.4. Creació de la zona intrínseca per difusió de Li a través del semiconductor (13).

Quan s'acaba la difusió, es deixa refredar el cristall, s'elimina l'excés de Li i es posa en contacte amb un potencial positiu exterior de 25 V a 1000 V. El camp elèctric establert desplaça els àtoms de tipus n (Li) cap a la part de tipus p. La concentració de Li es farà menor per $X < X_j$ i més gran per $X < X_0$, però mai menor de N_p (apareixeria un camp elèctric que "empentaria" els àtoms de Li cap a la part de tipus n), ni més gran que N_n (aniria en contra del camp elèctric establert): es crea una regió amb $N_n \approx N_p$ que es comportarà com un semiconductor intrínsec.

En acabar el procés, l'aparell s'ha de refrigerar. En cas d'un detector de Ge(Li) cal fer-ho immediatament per a mantenir el Li estàtic i evitar la seva migració. En cas d'un Si(Li) es pot tenir un temps a T ambient, recomanant-se però la seva refrigeració. La refrigeració és positiva també per a la disminució del soroll elèctric, en disminuir l'excitació tèrmica possible a temperatura ambient.

En la figura 2.5 hom hi pot veure el detector dins una cambra de buit, feta d'acer inoxidable. Un últim recobriment metàl·lic envolta el detector, amb una estreta finestra (d'Al o Be) que permet el pas dels fotons. La cambra de detecció va unida a un criostat tipus dit fred, i tot introduït en un "Dewar" que contindrà el N_2 líquid que actuarà de refrigerant. Aquest tipus de detector es descriu més detalladament en el capítol següent.

Hi ha diferents tipus de detectors de Ge(Li), sobretot tenint en compte la geometria del cristall i la forma de difondre's el Li:

- **Detectors planars.** El Li es difon d'una superfície a l'altra.

- **Detectors de tipus U.** El Li es difon per tres cares d'un bloc de Ge tipus p.

- **Detectors coaxials.** El Li es difon des de la superfície exterior del cristall en forma de cilindre, en direcció a l'eix interior.

- **Detectors "wrap-around".** El Li es difon per cinc cares d'un bloc trapezoidal.

- **Detectors totalment intrínsecs ("total depleted").** El Li es difon per tot el semiconductor, eliminant les zones no sensibles a la radiació incident.

- **Detectors semiconductors intrínsecs.** El més important és el de Ge. Conté una concentració d'impureses menor que 10^{16} àtoms/m³. La zona sensible del detector depèn del voltatge aplicat i de la concentració d'impureses.

Presenta una excel·lent resolució per energies entre 3 keV i 1 MeV. La possibilitat de contactes metàl·lics és múltiple (Au, Pd..), però és possible l'eliminació d'aquests, amb la disminució de les interferències per raigs X que això comporta.

Poden ser planars o coaxials, de tipus n o p i la refrigeració per N₂ només cal quan està en funcionament.

Els detectors de semiconductors són els més emprats, degut a llur alta resolució, resposta lineal en un interval ample d'energies, possibilitat de configuracions geomètriques especials, producció ràpida d'impulsos, nul·la influència de camps magnètics, per una grandària donada més alta eficiència, etc.

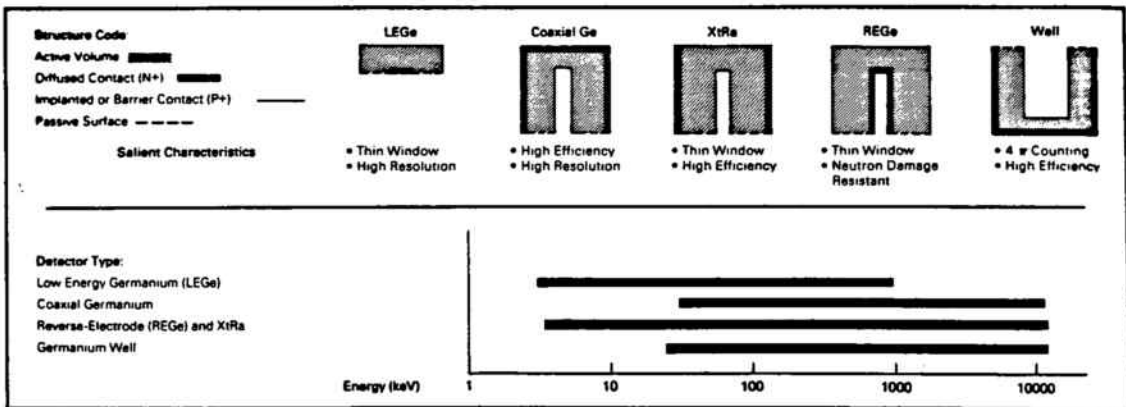


Figura 1.6. Tipus de detectors de Ge (15).

1.3.3 Altres detectors.

a) CdTe, Hgl₂, GaAs,..

Poden treballar a temperatura ambient i presenten una alta eficiència degut a l'alt nombre atòmic dels elements que els componen.

b) Detectors de gasos, dosímetres termoluminiscents, detectors Geiger-Muller,etc.

Més que per una quantificació exacta, s'empreen més als controls ambientals i de dosi.

1.5 BIBLIOGRAFIA.

(1) National Council on Radiation Protection and Measurements (1975c). "Natural Background Radiation in the United States." NCPR Re. No. **45**. Bethesda, Maryland.

(2) Lederer, C.M. Hollander, J.M., and Perlman, I. "Table of Isotopes", 6th Ed Wiley, New York, (1976).

(3) Wyerman, T.A., Farnsworth, R.K., and Stewart, G.L. "Tritium in streams in the United States, 1961-1968."; Radiol. Health Data Rep. **11**, 421-439, (1970).

(4) National Council on Radiation Protection and Measurements (1985b). "Carbon-14 in the Environment.", NCPR Re. No. **81**. Bethesda, Maryland.

(5) Moghissi, A.A., and Carter, M.W., eds. "Tritium.", Messenger Grafics, Phoenix, Arizona, (1973).

(6) National Council on Radiation Protection and Measurements (1975b). "Krypton-85 in the Atmosphere-Accumulation, Biological Significance, and Control Technology.", NCPR Re. No. **44**. Bethesda, Maryland.

(7) Nydal,R.;"Further investigation in the transfer of radiocarbon in nature"; J.Geophys. Res. **73**, 3617-3635, (1968).

(8) Eisenbud,M. "Environmental Radioactivity. From Natural, Industrial and Military Sources." ; Academic Press, Inc. 1250 Sixth Avenue, San Diego, California 92101, ISBN 0-12-235153-3; (1987).

(9) Karthren,R.; "Radioactivity in the Environment. Sources, Distribution and Surveillance."; Washington, Harwood Academic Publishers; 397 (1986).

(10) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR). 37th Session, suppl.No. **45** (A/37/45). United Nations, New York, (1982).

(11) McEachern,P., Myers,W.G., and White,F.A. "Uranium concentrations in surface air at natural and urban localities within New York State." Environ. Sci. Technol. **5**, 700-703, (1971).

(12) Ronneau Cl. "Environmental Sources of Radioactivity" First Summer School on Radioecology. SCK/CEN Mol, Belgium (1990).

(13) Tsoulfanidis,N., "Measurement and Detection of Radiation".Hemisphere Publishing Corporation, New York, (1983) ISBN 0-89116-523-1.

(14) Rosell, J.R. "Contribución al estudio de la radioactividad natural. Aplicación al litoral Catalán." Tesis doctoral. Universitat Politècnica de Catalunya. Dept. Física i Enginyeria Nuclear. Barcelona, 1989.

(15) Canberra, Catálogo. Canberra Industries, Inc. 1989.

CAPÍTOL 2.

**ESTUDI DELS PARÀMETRES INSTRUMENTALS,
CALIBRATGE I TRACTAMENT DE DADES DE LES
MESURES PER ESPECTROMETRIA GAMMA D'ALTA
RESOLUCIÓ.**

2.1 DESCRIPCIÓ DE LA CADENA DE DETECCIÓ.

La determinació i quantificació de radionúclids en mostres ambientals de baixa activitat requereixen la utilització dels components més sofisticats disponibles en el mercat. Pel que fa al detector, cal que aquest tingui una bona resolució en energies, encara que l'eficiència de detecció no sigui elevada. Això fa que els detectors emprats per aquests estudis siguin els detectors de semiconductor. Aquests detectors consten d'un monocristall de Ge(Li) o Ge intrínsec, el qual s'ha convertit en un díode capaç de soportar un alt voltatge de polarització inversa a les temperatures criogèniques (1,2).

En el laboratori de radiologia ambiental es disposa de dues cadenes de detecció de fotons gamma que permeten dur a terme l'espectrometria gamma d'alta resolució. Aquestes dues cadenes són similars entre elles, només és el tipus de cristall del detector de semiconductor el que canvia. En un cas és de Ge(Li) i en l'altre és de Ge intrínsec. En descriure cadascuna de les parts es destacaran les diferències entre elles.

El primer component de la cadena de detecció és la **font d'alta tensió** la qual polaritza adequadament el voltatge de treball del detector, alhora que ens suministra una tensió estabilitzada dins d'un interval molt ampli, la qual cosa és molt necessària ja que l'amplitud

dels impulsos de corrent a la sortida del detector, produïts per l'absorció d'un fotó en el monocristall de Ge(Li) o Ge intrínsec, són molt sensibles a les variacions de la tensió de polarització. Aquests impulsos de corrent, són de l'ordre de milivolts i de forma exponencial com hom pot veure en la figura 2.1 (2). Per tal que aquests impulsos no es perdin, amb el soroll electrònic que acompanya a la transmissió, cal amplificar-los immediatament a la sortida del detector. Aixó es fa mitjançant un **preamplificador**.

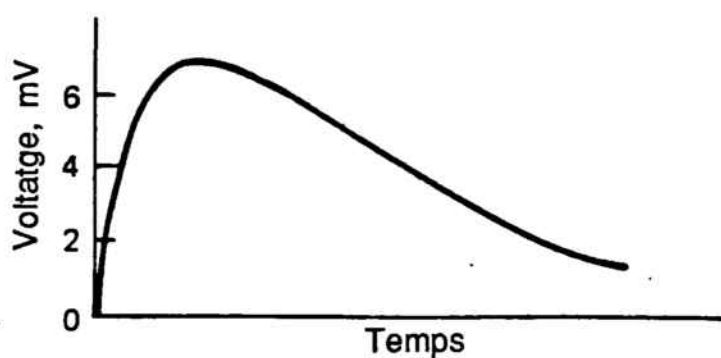


Figura 2.1. Forma de l'impuls a la sortida del detector.

Hi ha tres tipus de preamplificadors: sensibles a la càrrega, sensibles al voltatge i sensibles al corrent. El tipus de preamplificador més emprat en espectrometria, i l'únic emprat amb els detectors de semiconductor, és el sensible a la càrrega. Aquest, transforma l'impuls de corrent en un impuls de voltatge mitjançant un bucle sensible a la

càrrega que consisteix en un transistor d'efecte de camp amb realimentació capacitativa.

El primer propòsit del preamplificador és aconseguir un acoblament òptim d'impedàncies entre la sortida del detector (alta impedància) i la resta de la cadena de detecció (baixa impedància).

Un segon propòsit, és minimitzar qualsevol font de soroll que es pugui transmetre amb l'impuls i que ens degradaria la resolució en energies del sistema. Aquest segon propòsit, baix soroll, és particularment important en els detectors de semiconductor que són els que ofereixen una millor resolució en energies. Fins i tot, l'alt voltatge que alimenta el detector passa primer pel preamplificador a través d'un filtre d'alt voltatge (FET) per tal de disminuir al màxim el soroll termoinduït que ens pugui aportar l'alt voltatge.

Per tal d'aconseguir aquests dos propòsits, el preamplificador es troba col·locat molt pròxim al detector per tal de disminuir al màxim les longituds de les connexions entre ambdós, evitant així la pèrdua del senyal. Per altra part aquesta proximitat entre ambdós permet aprofitar la criogènia associada al detector per tal que el FET treballi a baixa temperatura, disminuint el soroll termoinduït produït per l'alt voltage.

Els impulsos a la sortida del preamplificador tenen un temps de

pujada ràpid (de l'ordre de ns) seguit d'un decreixement exponencial ($\approx 100 \text{ s}$) figura 2.2.

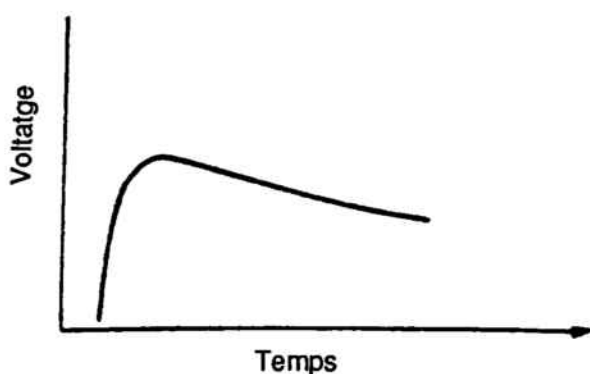


Figura 2.2. Forma del impuls a la sortida del preamplificador sensible a la càrrega.

La sensibilitat o guany dels preamplificadors sensibles a la càrrega s'expressa per la relació V/E . Tenint en compte que el voltatge a l'entrada del preamplificador és igual a $V=Q/C$ on C és la capacítància total i Q es la càrrega produïda en el detector donada per $Q=Ee/w$ (on E = energia de la partícula, e = càrrega del e^- i w = energia mínima necessària per produir un parell electró-forat), s'obté la següent expressió:

$$\frac{V}{E} = \frac{e}{C w} \quad (\text{mV/MeV})$$

Una vegada amplificat el senyal es transmés al pròxim component de la cadena de detecció, l'amplificador.

La principal funció de l'**amplificador** és amplificar en un factor de 1000 o més el senyal que li arriba del preamplificador. La necessitat d'aquesta amplificació és obvia ja que el senyal a la sortida del preamplificador, de l'ordre de milivolts, podria perdre part de la informació que porta o bé confondrés amb el soroll electrònic. La majoria d'amplificadors comercials permeten dues formes d'ajust de l'ampliació del senyal: un ajust gros i un ajust fi. L'ajust gros permet una amplificació en etapes i l'ajust fi permet ajustar l'amplificació contínuament entre cada etapa de l'ajust gros.

Una altra funció de l'amplificador és la de donar la forma adequada al senyal que li arriba del preamplificador. La forma aplicada al senyal dependrà dels requeriments de la mesura. En el cas de l'espectrometria gamma, on la resolució en energies és un paràmetre important, la forma adequada del senyal serà aquella que augmenti la relació senyal-soroll, per tal de ressaltar el senyal front el soroll elèctric que apareix inevitablement en tota la cadena d'amplificació.

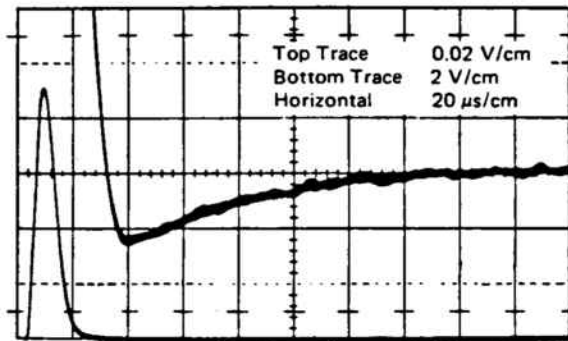
Finalment una altra funció de l'amplificador és la de permetre escollir la polaritat dels impulsos (unipolars o bipolars) per tal d'adaptar-la a la resta de l'equip de detecció.

Per tal d'obtenir bones mesures cal que l'amplificador compleixi una sèrie de requeriments. Aquests requeriments seran més o menys estrictes segons el tipus de mesura. Així, en el cas de mesurar solament el nombre de partícules, no llur energia, la precisió i l'estabilitat de l'amplificador poden ésser relativament pobres. En el cas de mesures espectromètriques, particularment en el cas d'emprar detectors de semiconductor, aquests requeriments de precisió i d'estabilitat són extremadament rígits. Ja que la resolució en energies d'un detector de Ge(Li) és de l'ordre de 0.1%, la dispersió del senyal deguda al procés d'amplificació ha de ser molt més petita, al voltant del 0.01%.

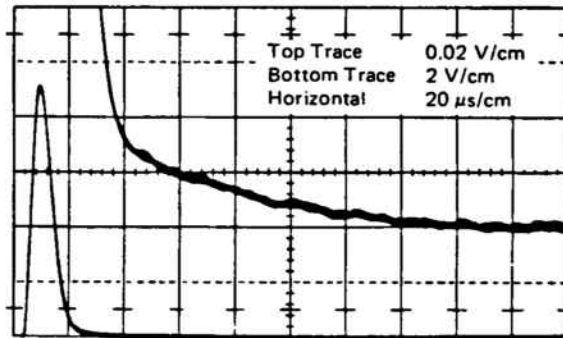
Un amplificador ideal per espectrometria seria aquell que tingués una amplificació constant pels impulsos de totes les amplituds sense distorsionar-los gens. Desafortunadament alguna distorsió dels impulsos sempre hi és present degut al soroll electrònic, la deriva del guany deguda a la temperatura, l'acumulació d'impulsos i les pròpies limitacions en la linealitat de l'amplificador.

Els amplificadors comercials donen un senyal màxim de sortida de 10 V, independentment de l'entrada i de l'amplificació aplicada. També porten incorporat un restaurador de la línia base, l'objecte del qual és eliminar les distorsions de baixa freqüència i els desplaçaments del corrent continu sense afectar a la forma del senyal i un ajust de

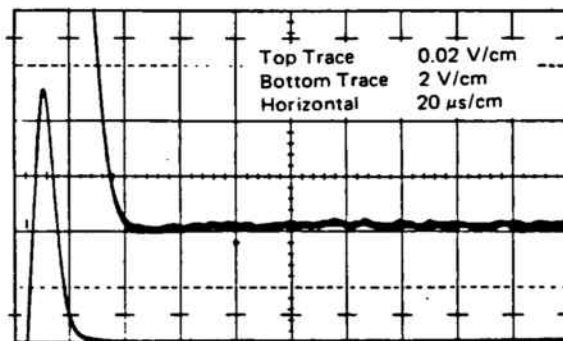
cancel·lació del pol-zero el qual permet reduir les cues dels impulsos procedents del preamplificador. En la figura 2.3 es pot veure l'efecte produït per un mal ajust del pol-zero (22).



Undercompensated Pole-Zero.



Overcompensated Pole-Zero.



Properly Adjusted Pole-Zero.

Figura 2.3. Ajust del pole-zero tal com es veu amb un oscil·loscopi

El senyal de sortida de l'amplificador passa al següent component de la cadena de detecció, el **convertor analògic digital (ADC)**, on es digitalitza el senyal obtenint-se un número proporcional a l'amplitud de l'impuls, mitjançant un rellotge amb un oscil·lador a freqüència constant de quars. L'ADC té a més un component per a guardar en memòria el senyal digitalitzat.

Mentre el convertor analògic digital està treballant amb un impuls, ignora tots els altres impulsos que li estan arribant, fent que s'introdueixi un temps mort en l'anàlisi d'un senyal. Aquest temps mort augmenta amb el nombre de canals que es tinguin en l'analitzador multicanal i per tant com més gran sigui la resolució més lent serà l'equip.

Finalment, per tal de mesurar l'espectre d'energies d'una font radioactiva, cal enregistrar la distribució de l'alçada dels impulsos produïts per les partícules emeses per la font. Aixó es fa mitjançant un **analitzador multicanal (MCA)**, format per un conjunt de memòries en les quals s'enmagatzemen els senyals digitalitzats per ADC. El senyal que surt del ADC és guardat en el canal corresponent del MCA. Els MCA comercials tenen fins a 8198 canals i cada canal pot guardar 20^{20} senyals.

Un desavantatge dels ADC-MCA és el temps mort per

emmagatzemar un impuls en un determinat canal. L'equació del temps mort és del tipus:

$$\tau = a_1 + a_2 C + a_3$$

on a_1 , a_2 i a_3 són constants donades pel fabricant

C és el nombre del canal

Així, la correcció del temps mort es pot aplicar per cada canal. El MCA mostra el % de temps mort durant la mesura, el RT o temps real de la mesura i el LT o temps amb correcció automàtica del temps mort.

Actualment els MCA a més de guardar en memòria el nombre d'impulsos porten acoblat un software que permet realitzar altres funcions tals com: integrar l'àrea d'un espectre, buscar l'energia d'un pic, seleccionar els isòtops que emeten un fotó d'una determinada energia, etc.

Les dades emmagatzemades en l'analitzador multicanal són transferides a un ordinador personal IBM XT-286 i guardades en un disquet.

Finalment les dades són transferides del disquet a l'ordinador IBM

3090 del Centre d'Informàtica de la Universitat de Barcelona on hi ha els programes adequats per tal de fer la quantificació de les dades de l'espectre.

En la figura 2.4 es mostra l'esquema de la cadena de detecció del Laboratori de Radiologia Ambiental del Departament de Química Analítica de la Universitat de Barcelona.

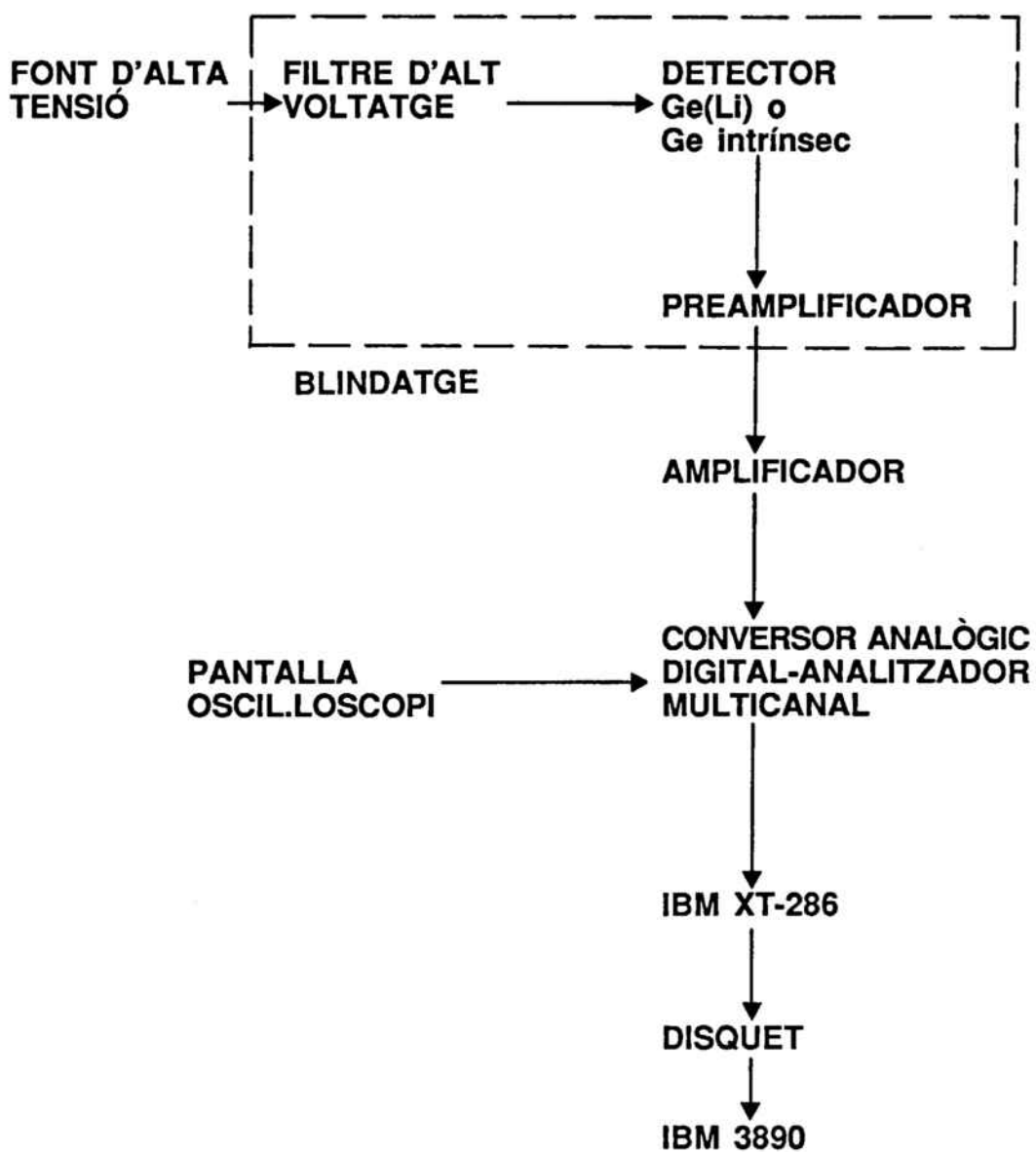


Figura 2.4. Esquema de la cadena de detecció i de quantificació de les dades.

A continuació es descriuen cadascuna de les parts de la cadena de detecció.

2.1.1 FONT D'ALTA TENSIÓ ESTABILITZADA. Marca ORTEC, model 459.

Característiques de la font d'alta tensió:

- * Sortides alta tensió estabilitzada:
 - de 0 a 5 kV, per a detectors que requereixen alt voltatge.
 - de 0 a 500 V, per a detector que requereixen baix voltatge.
- * Intensitat: de 0 a 100 μ A.
- * Soroll i ris: <10mV de pic a pic des de 2 Hz a 50Hz.
- * Inestabilitat del voltatge: variacions $\leq \pm 0.1\%$ / h a la sortida del voltatge amb una entrada a la font d'alta tensió constant, temperatura constant i càrrega constant.
- * Inestabilitat amb la temperatura: $\leq \pm 0.08\%$ / °C entre 10 i 50°C.
- * Linealitat de la sortida: entre $\pm 3\%$ del valor del dial.
- * Polaritat: es pot seleccionar, positiva o negativa.

Condicions de treball:

Detector Ge(Li):

- * Alta tensió estabilitzada: 4000 V.
- * Polaritat: positiva.

Detector Ge intrínsec:

* Alta tensió estabilitzada: 3500 V.

* Polaritat: positiva.

2.1.2 FILTRE D'ALT VOLTATGE. Marca ORTEC, model 138. Aquest és un transistor d'efecte de camp que es troba junt amb el preamplificador situat molt a prop del detector en la zona refrigerada per N_2 líquid. Figura 2.5. L'alt voltatge que alimenta al detector passa per aquest filtre d'alt voltatge per tal de disminuir al màxim el soroll electrònic.

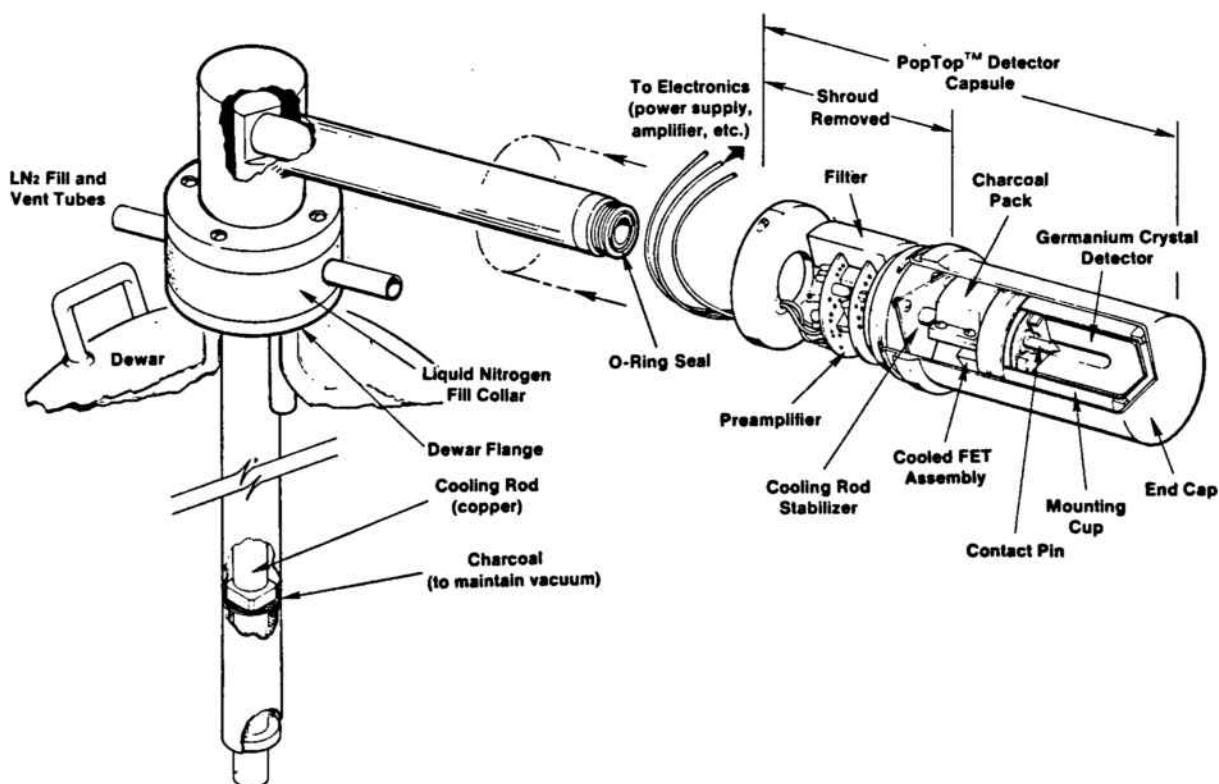


Figura 2.5. Detector de Ge(Li).

2.1.3 DETECTOR COAXIAL DE Ge(Li). Marca ORTEC, model GLI-10200, amb un criostat, marca ORTEC, model CFG-SV-GLI i recipient "dewar", model DWR-30, de 30 litres de capacitat i amb 20 dies d'autonomia, pel N_2 líquid emprat per a la refrigeració del cristall de Ge(Li). Figura 2.6. Aquesta refrigeració es du a terme mitjançant un dit fred ("cool finger") de coure. La part inferior del dit fred està introduïda en el nitrogen líquid i la part superior està en contacte amb el cristall de Ge(Li). Figura 2.7.

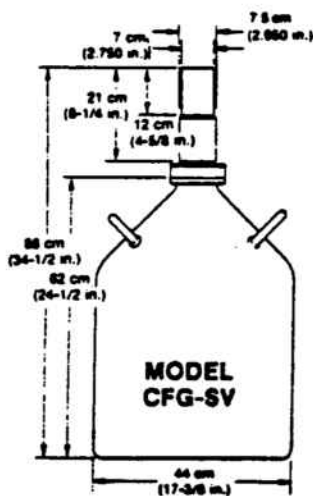


Fig. 2.6

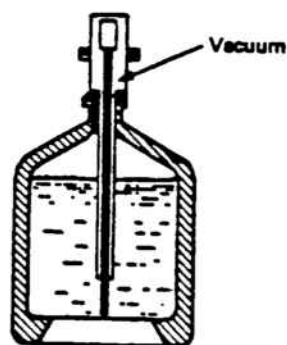


Fig. 2.7

Figura 2.6. Dimensions dels detectors de Ge(Li) i Ge intrínsec i del dewar incorporat.

Figura 2.7. Esquema de refrigeració del detector.

Característiques del detector de Ge(Li):

- * Volum actiu total del detector: 58.0 cm³.
- * Diàmetre del cristall: 44.9 mm.
- * Alçada del cristall: 41.7 mm.
- * Gruix del capçal d'alumini: 1 mm.
- * Distància del cristall al capçal: 3 mm.

Segons el constructor els paràmetres del detector són els següents:

	Garantitzat	Mesurat
* Resolució (FWHM) 1333 MeV ⁶⁰ Co:	2.00	1.76 KeV.
* Relació pic-Compton, ⁶⁰ Co:	36.0	46.5 KeV.
* Eficiència relativa 1.33MeV, ⁶⁰ Co:	10.0	12.1 %.
* Forma del pic (FWTM/FWHM), ⁶⁰ Co:	2.00	1.84.
* Forma del pic (FWFM/FWHM), ⁶⁰ Co:	3.00	2.50.
* Resolució (FWHM) 122 KeV, ⁵⁷ Co:	1100 ev.	--
* Tensió de polarització recomanada:	+ 4000 V.	

2.1.3 DETECTOR COAXIAL DE Ge INTRÍNSEC. Marca ORTEC, model GMX 15200-P amb recipient "dewar", model DWR-30, de 30 litres de capacitat i amb 20 dies d'autonomia, pel N₂ líquid emprat per a la refrigeració del cristall de Ge. Figura 2.6. Aquesta refrigeració es du a terme mitjançant un dit fred ("cool finger") de coure. La part

inferior del dit fred està introduïda en el nitrogen líquid i la part superior està en contacte amb el cristall de Ge. Figura 2.7.

Característiques del detector de Ge Intrínsec:

- * Volum actiu total del detector: 58.0 cm³.
- * Diàmetre del cristall: 44.7 mm.
- * Alçada del cristall: 41.5 mm.
- * Gruix del capçal d'alumini: 1.27 mm.
- * Distància del cristall a la finestra: 3 mm.

Segons el constructor els paràmetres del detector són els següents:

	Mesurat
* Resolució (FWHM) 1333 MeV, ⁶⁰ Co:	1.75 KeV.
* Relació pic-Compton, ⁶⁰ Co:	46.1 KeV.
* Eficiència relativa 1.33 MeV, ⁶⁰ Co:	12.2 %.
* Forma del pic (FWTM/FWHM), ⁶⁰ Co:	1.86.
* Forma del pic (FWFM/FWHM), ⁶⁰ Co:	2.5.
* Resolució (FWHM), 5.9 KeV, ⁵⁵ Fe:	690 eV.
* Tensió de polarització recomanada:	+ 3500 V.

2.1.4 PREAMPLIFICADOR. Marca ORTEC, model 137CP2, es troba junt amb el cristall de Ge(Li) an la zona refrigerada on hi ha practicat el buit. Figura 2.5.

Característiques del preamplificador:

- * Guany: 400 mV/MeV, senyal de l'impuls de sortida positiva.
- * Temps de creixement dels impulsos: 25 ns.
- * Impuls màxim de sortida: +10 V.
- * No linealitat: integral i diferencial, < 0.05%.

2.1.5 AMPLIFICADOR LINEAL. Marca ORTEC, model 572. Té doble senyal d'entrada (positiu o negatiu) amb una àmplia selecció de guanys, sis constants de temps (filtres interns) i doble tipus d'ona a la sortida (unipolar o bipolar). L'amplificador lineal és el mateix pels dos detectors.

Característiques de l'amplificador:

- * Interval de guany: Ajustable continuament de X1 a X1500.
- * Inestabilitat amb la temperatura:
Guany: 0.0075% / °C, des de 0 a 50°C.
- * Soroll: < 8 μ V referit a l'entrada (generalment 5 μ V) emprant una constant de temps de 2 μ s i un guany \geq 100.
- * Forma dels impulsos: Gausià.
- * Estabilitat de la taxa de comptatge: El fòtopic de la font de ^{60}Co de 1333 KeV presenta corriments <0.024% i variacions de l'FWHM (Full Width Half Maximum) <16% quan la taxa de comptatge varia de 0 a 100.000 comptes/s utilitzant una constant de temps de 2 μ s.

- * No linealitat integral: < 0.05% emprant 2 μ s de constant de temps.

Condicions de treball de l'amplificador pel detector Ge(Li):

- * Senyal d'entrada: positiu
- * Constant de temps: 2 μ s.
- * Guany (amplificació): x20.
- * Guany fi: 8.40
- * Restaurador linea base: AUTO
- * Cancel.lació Pole-Zero: AUTO

Condicions de treball de l'amplificador pel detector Ge intrínsec:

- * Senyal d'entrada: positiu
- * Constant de temps: 6 μ s.
- * Guany (amplificació): x50.
- * Guany fi: 5.92
- * Restaurador linea base: AUTO
- * Cancel.lació Pole-Zero: AUTO

2.1.6 CONVERSOR ANALÒGIC DIGITAL-ANALITZADOR

MULTICANAL. Marca ORTEC, model 5600, amb 4092 canals.

L'analitzador multicanal té incorporat un software amb múltiples funcions per a l'anàlisi dels espectres obtingut, tals com: calibratge lineal en energies de l'escala horitzontal, càlcul d'àrees d'interès netes i brutes,

refinat ("smoothing") de pics, selecció de zones d'interès (ROI), normalització, etc.

Característiques del conversor analògic digital (ADC):

- * Entrada a tota l'escala: 10 V.
- * Temps de creixement: 0.1-10 μ s.
- * Temps de decreixement: 0.3-10 μ s.
- * Temps mort: + 2.3 μ s +(0.01xN) μ s on N=n² canals.
- * Linealitat:
 - Integral: < \pm 0.075% per sobre del 99% de tota l'escala.
 - Diferencial: < \pm 1% per sobre del 99% de tota l'escala.
- * Inestabilitat:
 - Llarg termini: < \pm 0.01% del nivell zero de l'escala / 24 h a temperatura i voltatge constant.
 - Temperatura: < \pm 0.005% a tota l'escala / °C.
 - Desplaçament del pic: < \pm 0.04% a tota l'escala per a taxes de comptatge fins a 20 kHz.
- * Guany: 1024, 2048, 4096.

Característiques del multicanal:

- * Memòria: 4096 canals; memòria divisible en mitats o en quarts; 20²⁰ comptes màx. per canal.
- * Sistemes de control: manual, autoprograma o remot via EIA RS-232-C/20mA.

- * Pantalla: CRT, escala vertical lineal expandible o logarítmica, escala horitzontal expandible, cursor controlable digitalment.
- * Sortida de dades: porta sèrie RS-232C.

2.1.7 ORDINADOR PERSONAL. Marca IBM, PC/XT model 286.

Emprat per emmagatzemar les dades dels espectres en disquets.

- * Memòria: 640 Kbytes.
- * Sistema operatiu: DOS 3.30.
- * Disc dur: 20 Mb.
- * Unitats de disquet: 5" i 3.5" de doble densitat.
- * Perifèrics: impressora LX-800 EPSON.

2.1.8 ORDINADOR IBM 3090. Emprat per a la quantificació de les dades, del Centre de Càlcul de la UB.

2.2 ESTUDI DEL FONS I BLINDATGE DEL DETECTOR DE Ge(Li).

Degut a la radiació còsmica que contínuament bombardeja l'atmosfera de la terra i a la radioactivitat natural que existeix en el medi ambient, arriben al detector radiacions que formen l'anomenat fons del detector. Aquest fons depèn, a més a més, de la grandària del detector, del tipus de detector i del tipus de blindatge emprat. Les principals fonts que contribueixen al fons del detector es poden classificar en cinc tipus (1):

1) Radioactivitat natural dels materials que constitueixen el detector.

Els materials emprats en el sistema de detecció poden tenir elements radioactius com a constituents normals o com a impureses. En la taula 2.1 hom dóna les activitats específiques d'alguns materials emprats en la construcció dels detectors (3).

Una manera de disminuir aquest tipus de radioactivitat és escollint materials d'elevat grau de puresa. Pels detectors de Ge(Li) i de Ge intrínsec llur extremat grau de puresa, garanteix que la seva radioactivitat inherent sigui baixa. En aquest tipus de detectors, el principal portador de radioactivitat, sol ésser el filtre emprat per mantenir el buit dins del criostat del detector.

Taula 2.1. Nivells d'activitat natural d'alguns materials de construcció.

MATERIAL	d.p.m / g. de material		
	^{232}Th	^{238}U	^{40}K
Alumini (6061 Harshaw)	0.42	0.04	<0.05
Alumini (1100 Harshaw)	0.24	<0.017	<0.06
Alumini (1100 ALCOA)	0.08	<0.026	<0.11
Alumini (3003 ALCOA)	0.10	<0.026	0.56
Acer Inoxidable (304)	<0.006	<0.007	<0.06
Acer Inoxidable (304-L)	<0.005	<0.005	<0.02
Magnesi (barra)	0.06	<0.04	0.1
Magnesi (lingot)	<0.01	<0.002	<0.02
Magnesi (4" x4" Dow)	<0.005	<0.002	<0.02
Magnesi (PGT)	<0.05	<0.03	<0.05
Aliatge de Be-Cu	<0.02	<0.06	<0.2
Coure (làmina)	<0.05	<0.06	<0.2
Vidre Pyrex	0.45	0.27	3.8
Vidre Quartz	<0.018	<0.018	<0.07
Tamís Molecular	4.4	3.0	9.0
Neopré	<0.008	<0.01	0.36
Cautxo	0.12	1.0	2.0
Apiezon Q	4.5	4.5	2.7
Electrical tape-3M	<0.04	<0.06	<0.1
Ciment (Portland)	0.25	1.3	4.5
Resina Epoxy	0.006	0.01	0.19
Laca	0.002	0.005	0.04

2) Radioactivitat natural de l'equip auxiliar i del blindatge del detector.

Malauradament, el blindatge col·locat al voltant del detector per reduir el fons degut a les radiacions còsmiques i a la radiació terrestre, també produeix un fons significatiu de radioactivitat.

3) Radioactivitat de la superfície terrestre.

Tant els materials de la superfície terrestre com els materials de construcció del propi laboratori contribueixen en els fons radioactiu del detector. Aquesta radioactivitat es pot detectar fàcilment (4). És deguda a una sèrie d'elements que es troben repartits molt uniformement per tota l'escorça terrestre. Bàsicament són ^{238}U , ^{232}Th , els descendents d'ambdós i el ^{40}K , que es troben presents en quantitats variables en totes les roques i sòls. A més a més els materials que constitueixen les parets del laboratori, per provenir de l'escorça terrestre, també contenen quantitats considerables d'aquests elements radioactius.

4) Radioactivitat de l'aire que envolta el detector.

L'aire conté petites quantitats de gasos radioactius tals com el ^{222}Rn (Radó) i el ^{220}Rn (Toró) que són radionúclids descendents de les sèries del U i del Th presents en el sòl i en els materials de

construcció del laboratori. Llur concentració a l'atmosfera varia significativament, depenent de l'hora del dia i de les condicions metereològiques, així com també de les condicions de ventilació del laboratori.

Les partícules de pols atmosfèrica també poden portar una petita quantitat de radioactivitat, la qual pot eliminar-se fàcilment mitjançant una filtració efectiva de l'aire del laboratori.

5) Radiació còsmica en la seva component primària i secundària.

Una component significant del fons del detector procedeix de la radiació còsmica secundària produïda per les interaccions dels raigs còsmics en l'atmosfera. La radiació còsmica primària, amb origen galàctic o solar, està formada per partícules carregades (protons 86%, partícules α 12%) i nuclis pesants (2%) amb energies cinètiques extremadament altes. A l'interaccionar amb l'atmosfera es produeix una gran varietat de partícules secundàries tals com mesons π i μ , electrons, protons, neutrons i fotons electromagnètics amb energies de l'ordre de varis centenars de MeV (1) que són els causants del fons degut a la radiació còsmica. Moltes d'aquestes radiacions poden donar senyals en el detector, altres poden eliminar-se mitjançant el blindatge.

Com hom pot veure hi ha molts components que contribueixen al

fons del detector i aquests varien molt segons les circumstàncies. Així s'ha observat que el fons del detector varia amb el temps, presentant variacions perceptibles en períodes d'hores o de dies. Tot i que la component del fons deguda a la radioactivitat dels materials del detector i dels materials que l'envolten és constant, pot haver-hi variacions del fons degudes a variacions de la intensitat de la radiació còsmica o en la radioactivitat ambiental. S'ha vist que les variacions del fons estan relacionades amb les variacions a l'aire de l'activitat dels productes del ^{222}Rn (1,2).

En el cas de no emprar blindatge la component principal del fons del detector serà la radiació còsmica. Aquesta es pot eliminar instal·lant els detectors a una certa profunditat del sòl. D'aquesta manera les construccions de sobre eliminen part de la radiació còsmica, però, tot i això, cal una profunditat de diversos centenars de metres per tal d'eliminar el flux de mesons.

Quan s'empra blindatge la contribució al fons del detector de la radiació còsmica i ambiental disminueix, tenint molta més importància en aquest cas la contaminació radioactiva dels materials de construcció del detector i dels materials que l'envolten.

En la mesura de mostres actives el fons té poca importància, però per mostres ambientals les fluctuacions del fons poden ser del mateix

ordre que les de les mostres i per tant el fons en aquest cas té molta importància. Per tant, el blindatge del detector en mesures de radioactivitat ambiental és necessari per tal d'eliminar al màxim la radioactivitat procedent de les radiacions còsmiques i l'ambiental.

Alguns dels materials més emprats per a la construcció dels blindatges per detectors gamma són: plom, ferro o acer i mercuri.

El plom es un dels millors materials degut a la seva elevada densitat i nombre atòmic gran, per la qual cosa elimina gran part de la radiació còsmica, essent suficient un blindatge d'alguns centímetres de gruix. Pot portar com a impureses ^{210}Pb , descendent del ^{226}Ra , que té un període de semidesintegració de 20,4 anys i per la qual cosa si el plom és antic pot estar lliure d'aquesta contaminació. També pot contenir altres impureses degudes al "fallout".

El ferro o l'acer tenen l'avantatge de ser més econòmics que el plom antic, però degut a la seva baixa densitat i nombre atòmic petit és necessari un gruix molt més gran per a la construcció del blindatge. Cal emprar material amb un baix contingut de radioactivitat, ferro fabricat abans de 1950 té una activitat molt més baixa que el de després de la guerra.

El mercuri, degut a la seva elevada densitat i gran nombre atòmic,

és el millor material per a l'utilització com a blindatge, però té inconvenients tals com ésser líquid a temperatura ambient, elevada toxicitat i elevat cost.

El blindatge del nostre detector està format per 64 blocs de ferro de fundició, cadascun d'ells amb unes dimensions de $16 \times 16 \times 8 \text{ cm}^3$, amb un pes individual d'uns 18 kg. Aquests formen una estructura cúbica, oberta per la part superior, amb unes dimensions exteriors de $57 \times 57 \times 57 \text{ cm}^3$. El gruix de les parets del blindatge varia de 24 cm a la base del capçal del detector fins a 16 cm en la part superior del detector. Aquesta estructura de ferro es troba envoltada per un recobriments extern de plom de 1 cm de gruix. La tapa d'aquest blindatge la formen sis blocs de plom amb una dimensió total de $40 \times 30 \times 6 \text{ cm}^3$ i un gruix de 3 mm d'alumini. L'espai interior del blindatge per a la col.locació de les geometries té unes dimensions de $25 \times 25 \times 32 \text{ cm}^3$.

Per tal d'estudiar els fons radioactiu ambiental del nostre laboratori es va realitzar una mesura del fons sense blindatge en el detector. A la figura 2.8 es mostra l'espectre obtingut en aquestes condicions de mesura. A la taula 2.2 es donen els principals fotopics dels radionúclids corresponents a aquesta mesura. Com es pot veure tots els radionúclids identificats pertanyen al fons del tipus 3), essent radioactivitat procedent del material de l'escorça terrestre. També es

detecta ^{137}Cs , producte de fissió procedent de les proves i accidents nuclears realitzats a l'atmosfera.

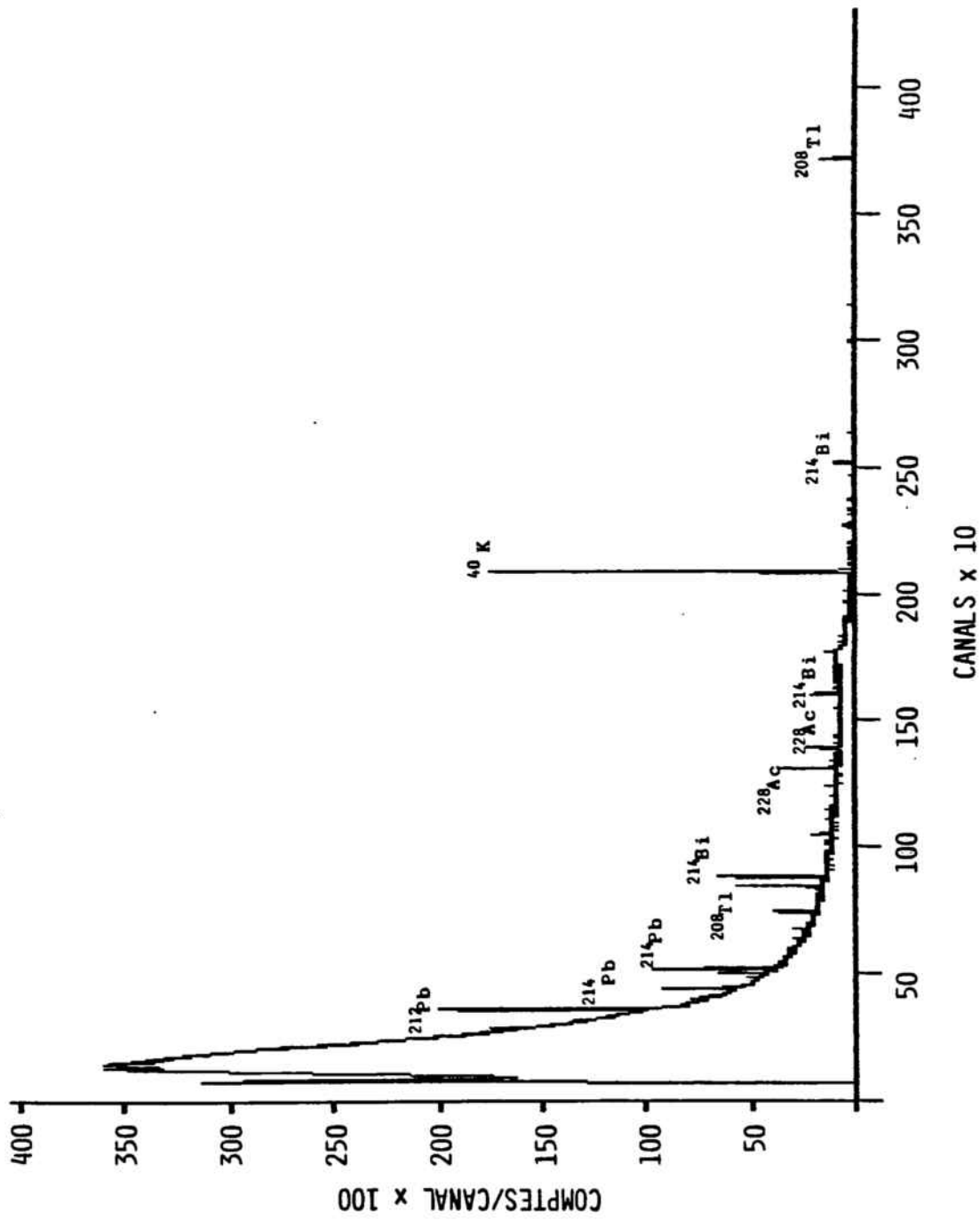


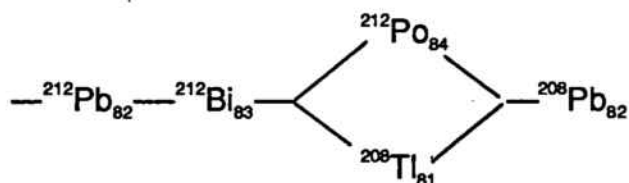
Figura 2.8. Espectre del fons del laboratori sense blindatge.

Taula 2.2. Fotopics presents en el fons sense blindatge.

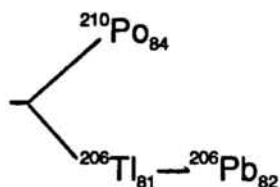
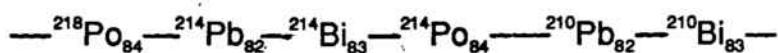
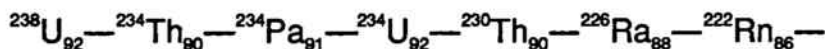
RADION.	ENERGIA TEOR.(KeV)	ENERGIA EXP.(KeV)	CANAL	NET/Δ (x 10 ⁶)	%INTENSITAT RELATIVA
²³⁵ U	185.7	186.0	285.8	59.7	6.5
²²⁸ Ac	209.3	209.8	319.5	34.8	3.8
²¹² Pb	238.7	238.9	360.8	537.7	58.3
²²⁸ Ac	270.3	270.5	405.6	29.4	3.2
²¹⁴ Pb	295.2	295.4	440.9	127.2	13.8
²¹² Pb	300.1	300.2	447.7	25.0	2.7
²²⁸ Ac	328.0	328.2	487.6	20.1	2.9
²²⁸ Ac	338.4	338.5	502.0	242.1	26.3
²¹⁴ Pb	351.9	352.0	521.1	238.8	25.9
²²⁸ Ac	463.0	463.1	678.5	34.3	3.7
Aniquilació	511.0	510.7	746.0	100.2	10.9
²⁰⁸ Tl	583.2	583.1	848.5	187.3	20.3
²¹⁴ Bi	609.3	609.2	885.5	238.8	25.9
¹³⁷ Cs	661.6	661.7	959.8	3.6	0.4
²¹² Bi	727.3	727.0	1052.1	39.3	4.3
²¹⁴ Bi	768.3	768.7	1110.4	17.1	5.2
²²⁸ Ac	794.9	794.4	1147.5	25.7	2.8
²⁰⁸ Tl	860.5	860.4	1240.8	23.3	2.5
²²⁸ Ac	911.2	910.9	1312.3	130.3	14.1
²²⁸ Ac	969.0	968.7	1393.9	54.0	5.9
²¹⁴ Bi	1120.2	1120.2	1607.9	37.5	6.6
²¹⁴ Bi	1238.1	1238.3	1774.5	29.7	3.2
²¹⁴ Bi	1377.6	1377.8	1971.5	17.0	1.8
²¹⁴ Bi	1407.9	1407.6	2013.9	9.4	2.4
⁴⁰ K	1460.7	1460.9	2088.7	921.7	100.0
²¹⁴ Bi	1509.1	1509.3	2157.0	8.9	2.2
²⁰⁸ Tl	1592.6	1593.0	2274.3	12.2	2.0
²¹⁴ Bi	1729.5	1729.7	2468.5	10.8	1.2
²¹⁴ Bi	1764.4	1764.4	2517.6	54.3	5.9
²¹⁴ Bi	1847.4	1846.9	2634.3	7.3	0.8

Les dues sèries radioactives que contribueixen majoritàriament a la radioactivitat ambiental deguda a radionúclids primordials són la sèrie del Th, la de l'U i el ^{40}K .

a) Sèrie del Tori:



b) Sèrie del Urani:



c) El K natural que té un 0.012% de ^{40}K .

Seguidament es va fer la mesura dels fons radioactiu del detector

amb el blindatge. En la figura 2.9 es mostra l'espectre obtingut en aquestes condicions de mesura i en la taula 2.3 es donen els fotopics corresponents a aquest espectre.

Taula 2.3. Fotopics presents en el fons amb blindatge.

RADION.	ENERGIA TEOR.(KeV)	ENERGIA EXP.(KeV)	CANAL	NET/Δ (x 10 ³)	%INTENSITAT RELATIVA
²²⁸ Ac	338.4	338.3	502.1	9.9	7.0
Aniquilació	511.0	510.0	746.8	92.5	65.1
²⁰⁸ Tl	583.2	583.1	848.9	20.9	14.7
²¹⁴ Bi	609.3	609.3	886.6	7.2	5.1
¹³⁷ Cs	661.6	661.6	960.0	7.8	5.5
²²⁸ Ac	911.2	911.0	1312.6	7.5	5.3
²¹⁴ Bi	1120.2	1120.2	1608.0	6.7	4.7
⁴⁰ K	1460.7	1460.8	2088.5	142.0	100.0
²¹⁴ Bi	1764.4	1764.3	2517.3	6.4	4.5

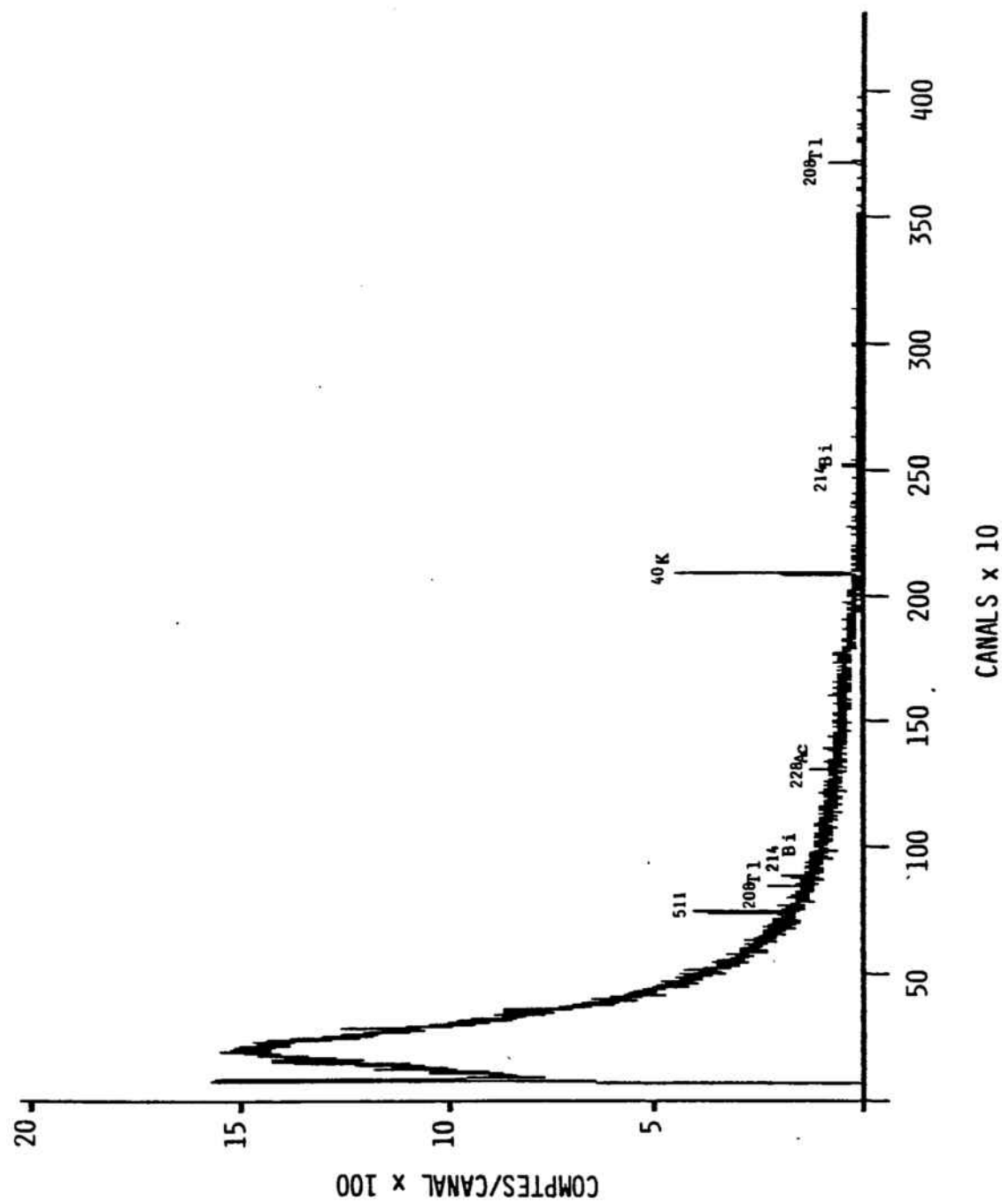


Figura 2.9. Espectre del fons del detector amb blindatge.

Com es pot observar (taules 2.2-3) hi ha una important disminució en el nombre de fotopics detectats en posar el blindatge al detector, així com en l'àrea neta la qual disminueix en tots al menys en un ordre de magnitud. El fotopic corresponent al ^{235}U a 185.7 KeV no s'observa en el fons amb blindatge, al igual passa pels fotopics del ^{212}Pb i ^{214}Pb . El pic de 511 KeV segueix essent important en l'espectre del fons amb blindatge. Aixó es degut principalment a les interaccions amb el blindatge de les radiacions gamma d'energia superior a $2mc^2$, les quals poden originar creació de parells, els quals, a l'aniquil·lar-se un dels dos fotons d'aniquil·lació poden contribuir en aquest pic de 511 KeV.

Un altre fotopic que segueix essent important en el fons amb blindatge és el corresponent al ^{40}K .

2.3 CALIBRATGE I EFICIÈNCIA DEL DETECTOR DE Ge(Li).

La finalitat de l'espectrometria gamma d'alta resolució consisteix en l'anàlisi qualitativa i quantitativa dels radionúclids presents en la mostra a analitzar.

Per tal de dur a terme l'anàlisi qualitativa i quantitativa dels radionúclids emissors gamma que conté una mostra, emprant un detector de Ge(Li), cal dur a terme un calibratge del detector. Aquest

calibratge consta de:

- * Calibratge en energies, el qual consisteix en trobar la relació canal-energia.
- * Calibratge en eficiències del sistema espectromètric en funció de l'energia dels fotons gamma, per a cadascuna de les geometries i densitats emprades en les mesures de les mostres, la qual ens permet conèixer l'eficiència de comptatge per a fotons de diferent energia.

A més convé comprovar un altre paràmetre de qualitat del detector:

- * Resolució en energies, la qual ens mesura la capacitat de diferenciar dos fotopics amb energies molt pròximes.

2.3.1 CALIBRATGE EN ENERGIES.

La determinació d'energies per espectrometria gamma d'alta resolució és un mètode de mesura relatiu, que requereix un calibratge en energies de la cadena de detecció abans de començar la mesura.

Aquest calibratge en energies consisteix en trobar la correspondència canal-energia, és a dir, la correspondència entre l'energia depositada en el detector per cada fotó de radiació gamma i

el nombre de canal de classificació de l'impuls elèctric en l'analitzador multicanal.

Per a dur a terme aquest calibratge en energies s'utilitzen fonts encapsulades de radionúclids emissors gamma d'energies conegudes i hom determina exactament el canal en el que queden classificats els fotopics corresponents als radionúclids emprats.

Aquesta relació canal-energia és una relació pràcticament lineal per aquests tipus de detectors, per a la qual cosa seria suficient determinar la posició de només dos fotopics, un a baixes energies i un altre a altes energies. Per a procedir al calibratge els fotopics han d'ésser ben definits i d'energia coneguda. Quan s'empra un nombre més gran de fotopics aquests han d'estar uniformement repartits a tot l'interval d'interès de l'espectre.

En radioactivitat ambiental, amb un interval d'energies d'interès entre 80 a 2000 KeV, hom acostuma a emprar per al calibratge en energies les corresponents fonts encapsulades del fotopic de 661.64 KeV del ^{137}Cs i del fotopic de 1332,47 KeV del ^{60}Co o també el pic de 511 KeV corresponent al pic d'anihilació i el fotopic de 1460,73 KeV del ^{40}K els quals s'obtenen en les mesures del fons radioactiu o en les mostres ambientals.

Tot i que existeix una bona proporcionalitat entre els canals i l'energia, hom pot fer un ajust lineal amb un polinomi de primer grau. La bibliografia consultada coincideix en aconsellar el polinomi

$$E = \sum_{j=0}^n a_j c^j \quad (1)$$

on:

E = energia

a_j = són els paràmetres a determinar

c_j = canals

Hi ha autors que treballen amb $n=1$ (5) i altres que treballen amb $n=2$ (6). Quan el nombre de pics que hom utilitza en els programes d'ajust per al calibratge canal-energia és gran, hom obté un ajust millor utilitzant $n = 4$ o superior (7). Generalment s'observa que la zona de més baixa energia és la que més s'allunya del comportament lineal. En el present treball la funció emprada en el calibratge en energies és la següent:

$$E = a_4 c^4 + a_3 c^3 + a_2 c^2 + a_1 c^1 + a_0 + a_{-1} c^{-1}$$

amb la qual s'obté un millor ajust, per mínims quadrats, a tot l'interval d'energies. Degut als petits corriments amb el temps del canal associat a cada fòtomic (inferiors a 0.5 canals) els paràmetres del polinomi de calibratge es calculen per mínims quadrats cada vegada que es du a terme la quantificació d'una mostra. A la taula 2.4 es mostren els radionúclids continguts en la solució patró, emprada experimentalment per a dur a terme el calibratge en energies, els valors teòrics de llurs

energies, els valors de les energies calculades emprant la funció anterior i els canals trobats experimentalment.

Taula 2.4. Radionúclids del patró QCY.44, energia teòrica, energia experimental i canal corresponent.

RADIONÚCLID	$E_{\text{TEÒRICA}}$	$E_{\text{CALCULADA}}$	CANAL
^{109}Cd	88.04	87.53	146.8
^{57}Co	122.06	121.69	195.1
^{139}Ce	165.85	165.63	257.2
^{203}Hg	279.20	279.29	417.9
^{113}Sn	391.69	391.91	577.1
^{85}Sr	513.99	514.31	750.2
^{137}Cs	661.64	662.06	959.1
^{88}Y	898.02	898.40	1293.2
^{60}Co	1173.21	1173.43	1682.0
^{60}Co	1332.50	1333.54	1907.0
^{88}Y	1836.00	1835.41	2617.9

A la figura 2.10 hom a representat la relació canal-energia teòrica i a la figura 2.11 hom representa la relació canal-energia calculada amb la funció de calibratge en energies comentada anteriorment. Hom observa una bona linealitat en ambdós casos.

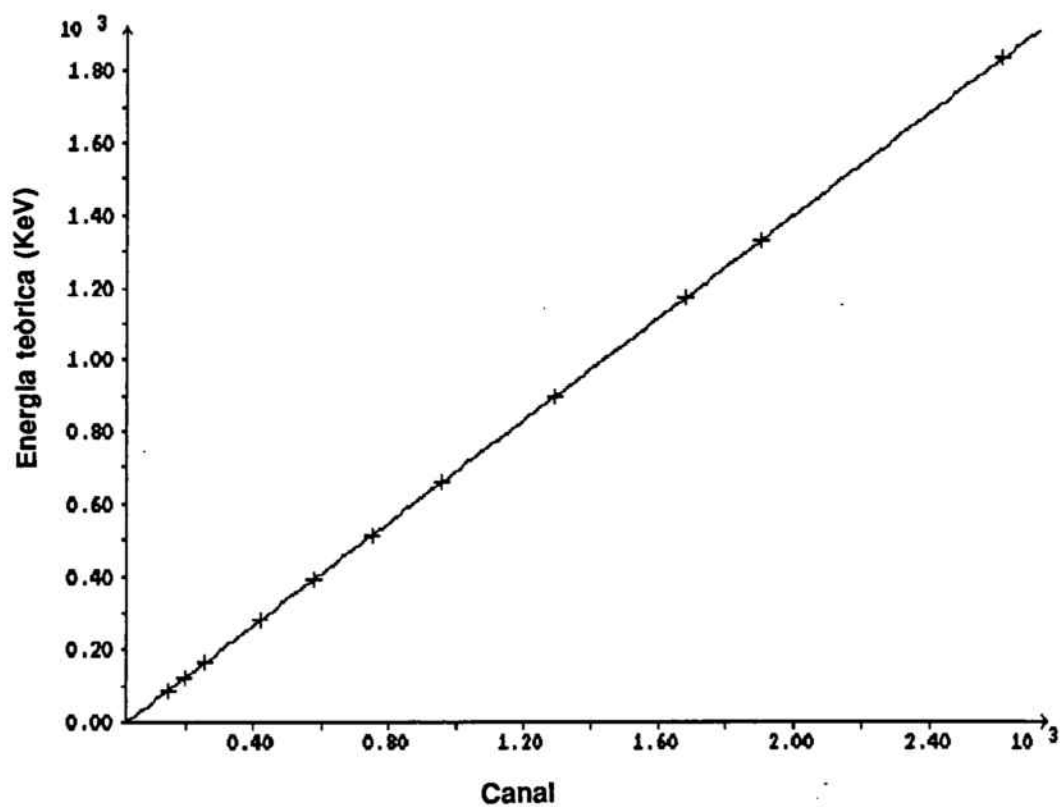


Figura 2.10. Representació de la relació canal-energia teòrica.

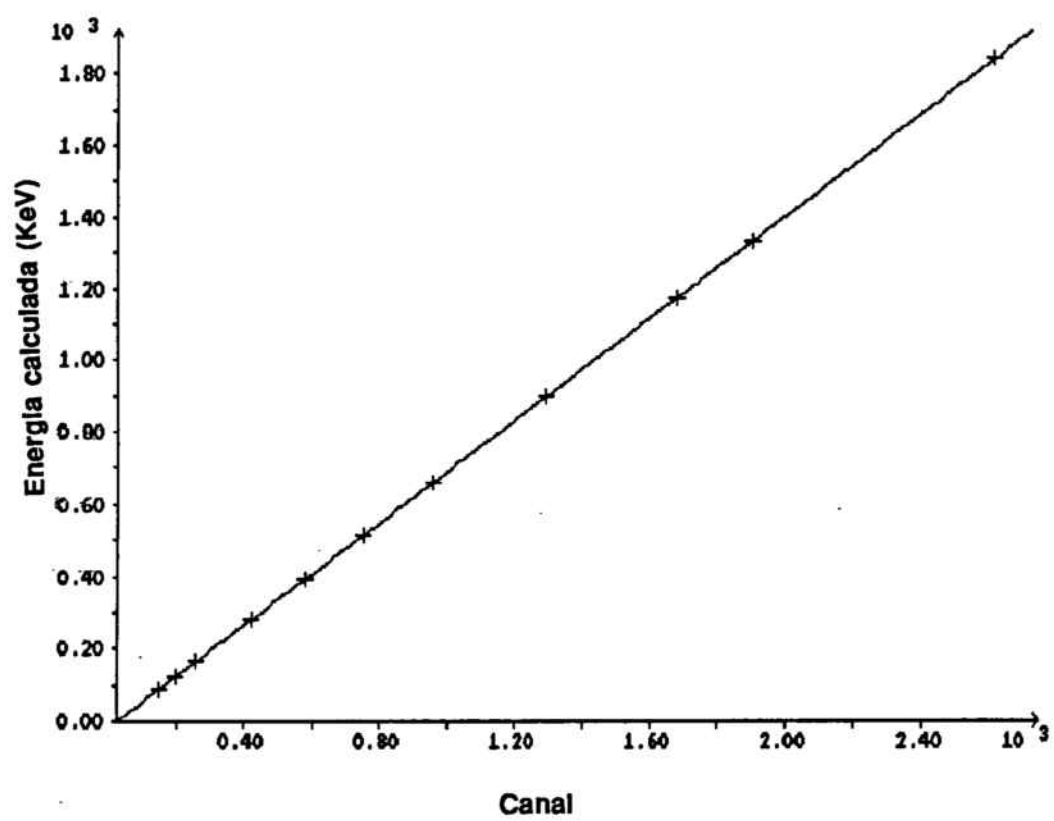


Figura 2.11. Representació de la relació canal-energia calculada.

Hom observa una bona linialitat en ambdós casos.No obstant això, cap sistema és absolutament lineal. Aquesta desviació de la linealitat es mostra en la figura 2.12, on es pot veure que per energies altes i intermitges la linealitat del nostre sistema és bona, però per energies baixes la desviació de la linealitat és notable.

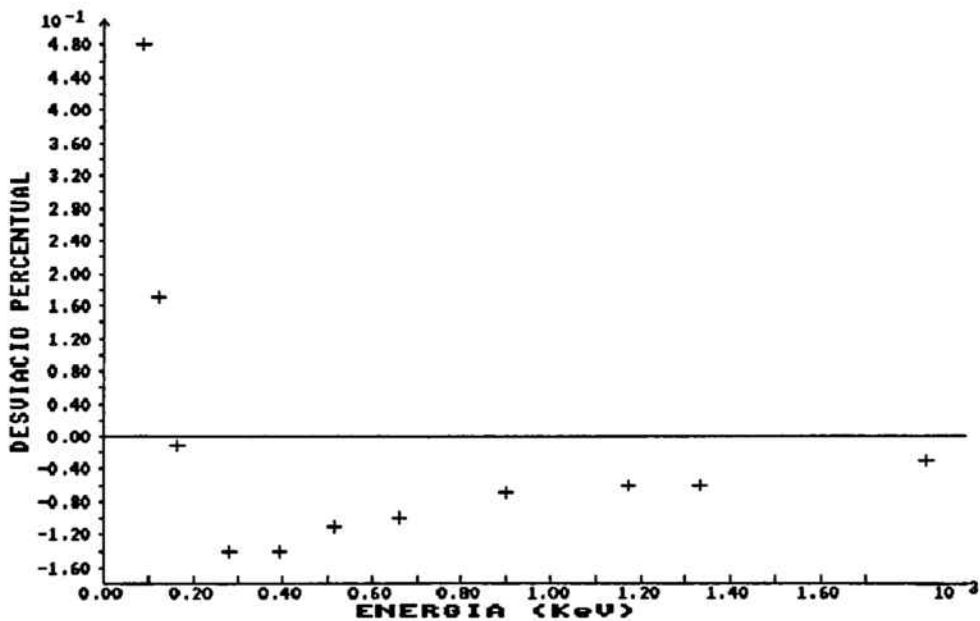


Figura 2.12. Desviació de la linialitat en el calibratge en energies.

2.3.2 CALIBRATGE EN EFICIÈNCIES.

Existeixen diferents formes de definir l'eficiència del detector o relació entre el nombre de comptes i el nombre de fotons. Així podem parlar d'eficiència total del detector, d'eficiència del fòtòpic, d'eficiència del pic de doble escapament i d'eficiència del pic de simple escapament. Cadascuna d'elles és funció de l'espectre energètic de radiació gamma, de la composició i dimensions del detector i de la geometria de la font. A més cadascuna d'elles es pot dividir en absoluta, intrínseca i relativa.

Eficiència total del detector.

a) Eficiència total absoluta del detector. Es la probabilitat que un fotó gamma emès per una font radioactiva determinada sigui enregistrat pel detector:

$$e_{t,abs} = \frac{\text{n}^{\circ} \text{ comptes enregistrades en el detector}}{\text{n}^{\circ} \text{ fotons gamma emesos per la font en totes direccions i de qualsevol energia}}$$

La geometria assumida per a aquesta definició de l'eficiència total absoluta del detector es mostra en la figura 2.13.

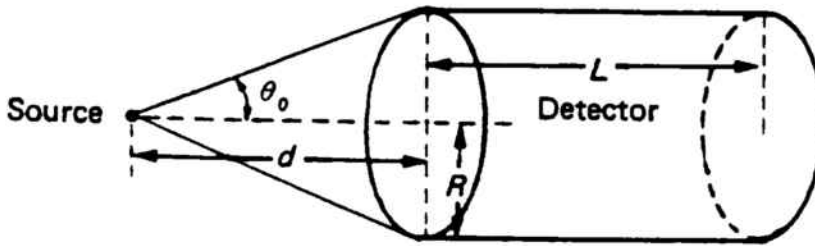


Figura 2.13. Geometria asumida en la definició de l'eficiència total absoluta.

Aquest tipus d'eficiència depèn de l'energia de la radiació gamma, de la geometria del detector (L , R) i de la distància font-detector (d).

Pel càlcul teòric i la determinació experimental de l'eficiència total absoluta del detector cal conèixer la intensitat d'emissió de la font radioactiva gamma, l'angle sòlid que presenta el detector vist des de la font i el volum actiu del detector. Degut a que les fonts radioactives generalment no són puntuals i és difícil conèixer amb exactitud el volum actiu del detector, això, fa que el càlcul d'aquest tipus d'eficiència sigui més complicat.

b) Eficiència total intrínseca del detector. Es la probabilitat que un fotó gamma que incideixi sobre el detector sigui enregistrat:

$$e_{t,int} = \frac{\text{n}^{\circ} \text{ comptes enregistrades en el detector}}{\text{n}^{\circ} \text{ fotons gamma incidents en el detector de qualsevol energia}}$$

La geometria asumida per a aquesta definició de l'eficiència total intrínseca del detector es mostra en la figura 2.14.

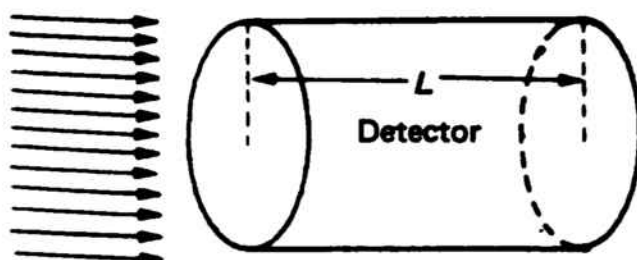


Figura 2.14. Geometria asumida en la definició de l'eficiència total intrínseca.

Aquest tipus d'eficiència depèn de l'energia de la radiació gamma i de la grandària del detector (L). Per a la seva determinació cal una font de radiació gamma d'intensitat coneguda.

Per a la seva determinació cal una font de radiació gamma d'intensitat coneguda.

Generalment, l'eficiència de detecció total no té molt interès en espectrometria gamma, però pot donar informació sobre el volum actiu del detector, el qual no es fàcil d'obtenir d'una altra forma.

Eficiència del fòtòpic.

a) Eficiència absoluta del fòtòpic. Es la probabilitat que un fòtò gamma d'energia E_i , emès per una font radioactiva sigui enregistrat en el fòtòpic corresponent a l'energia E_i . S'expressa com:

$$e_{\text{absoluta}} = \frac{\text{comptes enregistrats en el fòtòpic d'energia } E_i}{n^2 \text{ fòtons gamma d'energia } E_i, \text{ emesos per la font en totes direccions}}$$

Aquesta eficiència varia amb l'energia dels fòtons considerats, tipus de detector, la geometria d'ambdós i la densitat de la font. La dependència geomètrica ve donada per l'angle sòlid promig que

presenta el detector vist des de la font i pel gruix. Per a la determinació experimental de l'eficiència absoluta del fòtòpic és necessari disposar de fonts de radioactivitat coneguda amb gran exactitud i que llur interval d'energies cobreixi uniformement la zona de l'espectre que interessa (de 80 a 2000 Kev en el cas de la radioactivitat ambiental).

b) Eficiència intrínseca del fòtòpic. Es la probabilitat que un fòtò gamma d'energia E_i que incideixi sobre el detector sigui enregistrat en el corresponent fòtòpic de l'espectre:

$$e_{\text{intrínseca}} = \frac{\text{comptes enregistrades en el fòtòpic d'energia } E_i}{n^2 \text{ fotons gamma incidents en el detector amb energia } E_i}$$

Tant el càlcul teòric com la determinació experimental de l'eficiència intrínseca poden ser complicats, ja que per conèixer el nombre de fotons que incideixen en el detector cal conèixer a més a més de la intensitat d'emissió, l'angle sòlid que presenta el detector vist des de la font i com s'ha dit anteriorment, això no és fàcil degut, principalment, a que la font radioactiva normalment no és puntual.

Eficiència dels pics de doble i simple escapament.

Es defineixen com:

$$e_{\text{doble escapament}} = \text{Eficiència total del detector} \times \frac{\text{comptes pic doble escapament}}{\text{comptes totals}}$$

i

$$e_{\text{simple escapament}} = \text{Eficiència total del detector} \times \frac{\text{comptes pic simple escapament}}{\text{comptes totals}}$$

Segons s'utilitzi l'eficiència total absoluta o l'eficiència total intrínseca del detector, s'obtenen les corresponents eficiències absolutes o intrínseques respectivament.

L'eficiència relativa, es pot calcular per tots els casos anteriors, es defineix com:

$$\text{Eficiència relativa} = \frac{\text{Eficiència absoluta}_i}{\text{Eficiència d'un estàndard}}$$

essent i qualsevol de les eficiències definides anteriorment.

Generalment l'eficiència relativa pels detectors de Ge(Li) i Ge intrínsec es calcula emprant com a estàndard un detector de NaI(Tl) de 3"x3" i una font de ^{60}Co situada a 25 cm del detector. Es dóna referida al fòtic de 1333 KeV del ^{60}Co .

En espectrometria gamma el tipus d'eficiència que més ens interessa, per tal de determinar posteriorment l'activitat absoluta de radiació gamma d'una font radioactiva problema, és l'eficiència absoluta del fòtic. Per a la seva determinació, s'han d'emprar patrons d'activitat coneguda i cal tenir cura dels següents factors:

a) Les dues fonts, patró i problema, han de tenir igual geometria i igual densitat per tal que al mesurar-les en idèntiques condicions experimentals es verifiqui a igualtat d'energies que:

$$A_{\text{problema}} = A_{\text{patró}} (R_{\text{problema}}/R_{\text{patró}})$$

on: A_{problema} = activitat de la mostra problema.

$A_{\text{patró}}$ = activitat del patró.

R_{problema} = comptes per unitat de temps de la mostra problema.

$R_{\text{patró}}$ = comptes per unitat de temps del patró.

b) Les condicions geomètriques de la mesura, dimensions de la font i distància font-detector, han de ser rigurosament idèntiques per tal de no tenir variacions en l'angle sòlid que presenta el detector vist des de cada punt de la font, ni variacions del gruix de material que cal travessar per arribar a la zona sensible del detector.

- c) Els materials que estan al voltant de la font i del detector han de ser sempre els mateixos per tal d'evitar variacions tant en la retrodifusió com en la component de raig X de desexcitació atòmica.
- d) Igual densitat i gruix de la font per tal d'evitar variacions en l'autoabsorció.
- e) S'ha de verificar amb freqüència la reproductibilitat de les mesures
- f) S'ha d'evitar la contaminació de les mostres i patrons, així com la possible contaminació del detector.

2.3.3.1 Determinació experimental del calibratge en eficiències del fòtopic.

Aquest calibratge en eficiències s'ha dut a terme per a les diferents geometries i densitats emprades en aquest estudi per tal de veure quina geometria presenta un millor rendiment de mesura, és a dir, una millor eficiència i determinar així quina d'elles és la més idònia per a la mesura de cada tipus de mostra.

Per tal d'obtenir les diferents corbes d'eficiència per l'interval normal de treball (80-2000 Kev) es va procedir tal com s'indica tot seguit:

- 1) MESURA DEL FONTS. Com a pas previ es va determinar el fons

que presenta l'equip de detecció en les condicions de treball, material del blindatge, materials de construcció del laboratori, etc. en què es varen efectuar les mesures. El temps de comptatge del fons va ser de 160.000 segons, per tal que els fotopics obtinguts presentin una distribució segons la funció estadística de Poisson.

2) PATRO. El calibratge en eficiències del detector es va fer utilitzant com a patró una mescla de radionúclids subministrat per la casa Amersham, amb referència QCY.44. Aquest patró és una mescla de nou radionúclids, en una solució de HCl 4 M, que dóna un espectre gamma amb onze fotopics dins de l'interval energètic d'interès.

Els radionúclids que conté aquest patró són: ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{203}Hg , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{88}Y i ^{60}Co . A la taula 2.5 es donen els valors certificats dels raigs gamma emesos per segon i per gram de solució i els errors estadístic, sistemàtic i total corresponents a aquest patró. A la figura 2.15 l'espectre gamma corresponent.

A més dels nou radionúclids, la solució conté també cadmi, cobalt, ceri, mercuri, estany, estronci, cesi i itri com a portadors, a una concentració de 25 $\mu\text{g/ml}$. La solució és subministrada en una petita ampolla de vidre tancada al foc, amb una activitat total de 5 μCi .

Taula 2.5. Valors certificats de la solució estàndard emprada per a la calibració, suministrada per la casa Amersham amb referència QCY.44. Data de preparació: 1-10-1988.

Radionúclid	Energia de la radiació gamma (MeV)	Raigs gamma emesos per segon i per gram de sol.	Error estàdístic %	Error sistemàtic %	Error Total %
¹⁰⁹ Cd	0.088	632	± 0.1	± 3.7	± 3.8
⁵⁷ Co	0.122	578	± 0.3	± 2.0	± 2.3
¹³⁹ Ce	0.166	681	± 0.3	± 3.5	± 3.8
²⁰³ Hg	0.279	2019	± 0.2	± 2.0	± 2.2
¹¹³ Sn	0.392	2023	± 0.4	± 4.2	± 4.6
⁸⁵ Sr	0.514	3921	± 0.2	± 1.7	± 1.9
¹³⁷ Cs	0.662	2566	± 0.5	± 2.6	± 3.1
⁸⁸ Y	0.898	6171	± 0.2	± 3.6	± 3.8
⁶⁰ Co	1.173	3327	± 0.3	± 0.5	± 0.8
⁶⁰ Co	1.333	3331	± 0.3	± 0.5	± 0.8
⁸⁸ Y	1.836	6579	± 0.2	± 2.6	± 2.8

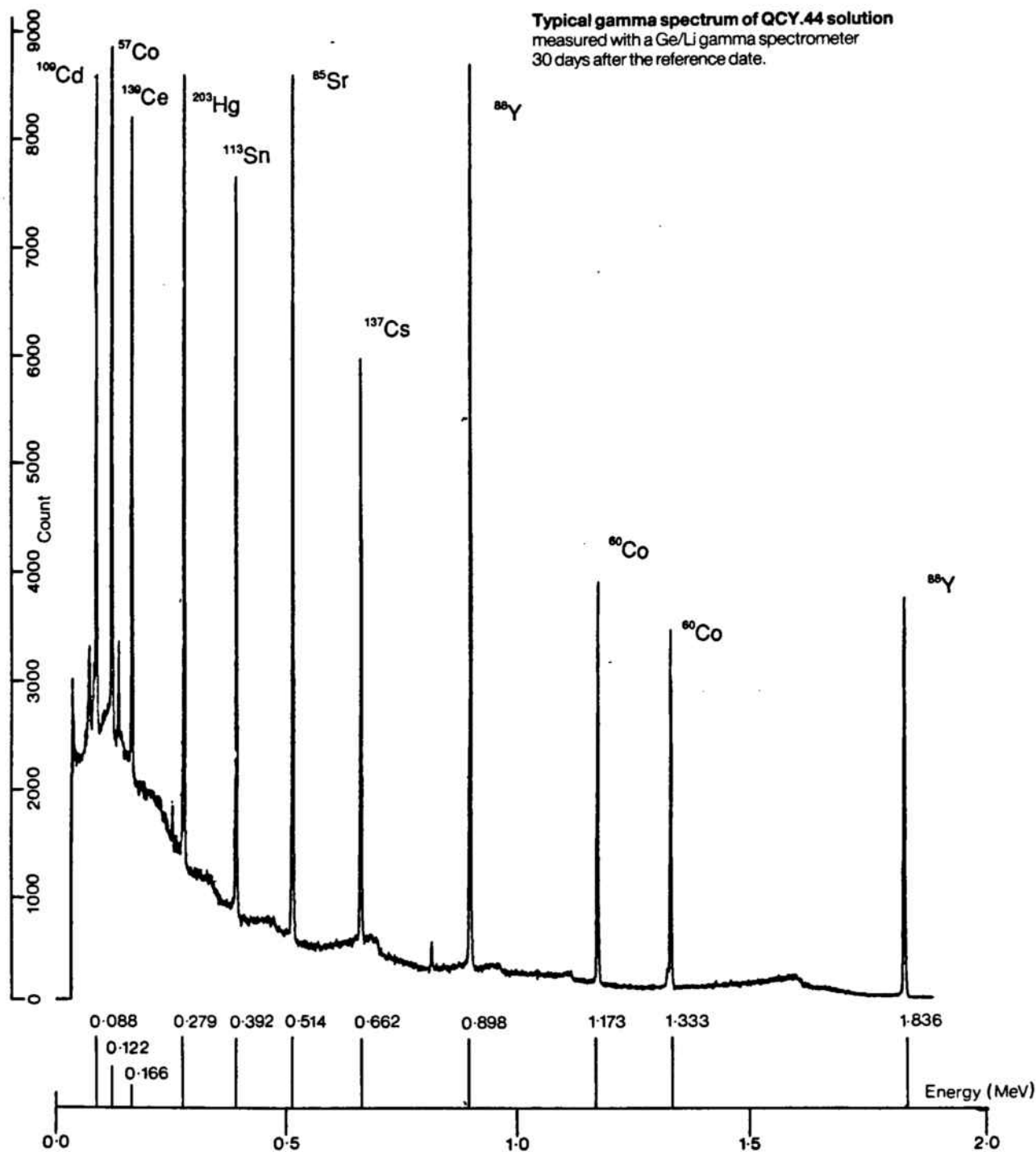


Figura 2.15. Espectre gamma del patró QCY.44.

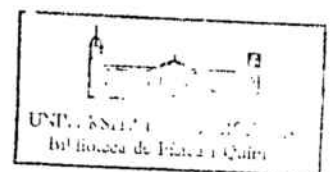
3) PROCEDIMENT PER A LA PREPARACIÓ DELS PATRONS EMPRATS EN EL CALIBRATGE. El calibratge en eficiències del detector es fa tenint en compte totes les possibles combinacions de recipients i materials, que s'empraran posteriorment en la mesura de les mostres.

Les mostres a analitzar en el present treball són: sorres, terres, solucions aquoses i els filtres emprats en la col·lecció de matèria particulada dels aerosols atmosfèrics.

A la taula 2.6 es donen les geometries calibrades, indicant el tipus de mostra per la qual són emprades, les dimensions i el material en que estan fets els recipients.

Tot el procés de preparació dels patrons es realitza en el laboratori calent del Laboratori de Radiologia Ambiental de la Universitat de Barcelona, treballant sempre en la vitrina, per tal de disminuir la contaminació per aerosols durant l'homogenització dels materials marcats utilitzats en la preparació dels patrons i amb les precaucions necessàries que comporta la manipulació d'aquest material.

En la preparació dels patrons per a la determinació de l'eficiència absoluta dels fotopics, per a els diferents recipients i materials que



poden constituir la mostra, s'ha tingut molta cura que el patró afegit es repartís uniformement per tota la mostra, per a tenir garantia de l'homogeneïtat dels patrons preparats. Degut a que l'activitat de la solució patró ens ve certificada com a desintegracions per segon i per gram de solució, treballarem sempre per pesada de les solucions.

Taula 2.6. Descripció de les geometries calibrades.

GEOM.	MOSTRA	VOLUM	ALÇADA	DIÀMETRE	MATERIAL
1	Sorra	750	8.0	11.0	PVC
2	Terra	750	8.0	11.0	PVC
3	Terra	1000	3.0	8.0	Polietilè
4	Terra	1000	6.0	8.0	Polietilè
5	Terra	1000	9.0	8.0	Polietilè
6	Aigua	750	8.0	11.0	PVC
7	Aigua	150	8.0	6.0	Polietilè
8	FA	50	3.0	6.0	PVC
9	FFV	50	3.0	6.0	PVC
10	FA	100	3.0	6.0	PVC
11	FFV	100	3.0	6.0	PVC

FA: Filtres d'acetat de cel.lulosa.

FFV: Filtres de fibra de vidre.

Procediment per a la preparació de patrons:

a.- Preparació de la **Solució Mare** a partir de la solució patró subministrada per la casa Amersham. S'agafa una alíquota de la solució patró, es pesa i es dilueix fins uns 150 ml s'homogenitza i es pesa. La dilució es du a terme amb una solució "carrier" del la mateixa acidesa (HCl 4M) i amb el mateix contingut (25 µg/ml) de cadascun dels metalls dels radionúclids presents en el patró.

b.- Preparació de diferents vials, un per cada geometria que hom vulgui calibrar. S'addiciona a cadascun d'ells una alíquota de la solució mare, es pesa i s'acaba d'omplir el vial amb solució carrier. Aquestes alíquotes són les que s'addicionaran als diferents materials a calibrar (terra, sorra...).

Procediment per a la preparació de les geometries patró.

1.- S'agafa el recipient que hom vol calibrar i s'hi introdueix una capa d'uns dos centímetres de material, prèviament triturat i homogenitzat. A aquesta primera capa de material s'afegeix una part de la solució mare continguda en un dels vials, emprant una pipeta Pasteur, de manera uniforme sense que es mullin les parets del recipient. S'asseca el material amb l'ajut d'una làmpada de IR i quan ja està sec

s'homogenitza bé tot el material marcat amb l'ajut d'una vareta de vidre. Es repeteix el procés per a les diferents capes de material i de solució mare adicionades, assecant i homogenitzant cada vegada. Quan s'acaba la solució mare continguda en el vial, aquest es renta tres vegades amb solució carrier i després una vegada amb aigua destil.lada, addicionant aquestes aigües de rentat al material a calibrar, treballant de la mateixa manera que per l'addició de la solució mare.

2.- Una vegada addicionat tot el material radioactiu contingut en el vial, el material marcat es trasvassa en petites quantitats a un altre recipient, es mescla i es repeteix aquest procés, fins que s'ha trasvassat tot el material, per tal d'assegurar una correcta homogenització del material marcat. Aquest procés es repeteix tres vegades. Finalment es trasvassa el material a un tercer recipient amb el qual es farà la mesura.

3.- Tot el material emprat en aquesta preparació es introduït en una bossa de plàstic i es fa una mesura ràpida en el detector de Ge(Li) per tal de comprovar que s'ha trasvassat tot el material marcat i que els rentats del vial han estat suficients.

4.- Aquest procés de preparació del material marcat es fa amb una quantitat de material suficient per tal d'omplir el recipient de més capacitat. Per a preparar altres recipients de menor capacitat, hom

pren una porció del material marcat preparat anteriorment, tenint en compte el factor del pes respecte al total.

4) MESURA DELS PATRONS I OBTENCIÓ DEL VALOR D'EFICIÈNCIA. Les geometries patró, preparades tal com s'ha indicat anteriorment, es compten en el detector de Ge(Li) durant el temps suficient per a tenir una bona estadística. Els temps de mesura depenen de les diferents activitats dels patrons, oscil·lant entre 10000 i 70000 s.

En acabar la mesura, s'obté un espectre que pot ser observat en la pantalla del multicanal. A la figura 2.16 es mostra l'espectre corresponent a la geometria 2, on el material marcat és terra i el recipient emprat és el de 750 cc de volum.

La sortida del multicanal està connectada a l'ordinador personal IBM-XT 286 mitjançant una sortida RS 232C, a on s'emmagatzemen els espectres en disquets mitjançant el programa AMILCARD. Un cop han estat emmagatzemats els espectres, són portats al Centre de Càlcul de la Universitat de Barcelona a on són transferits al disc dur de l'ordinador IBM-3090, on es troben el programa d'ajust d'espectres i les llibreries necessàries per a realitzar l'anàlisi qualitativa i quantitativa dels espectres.

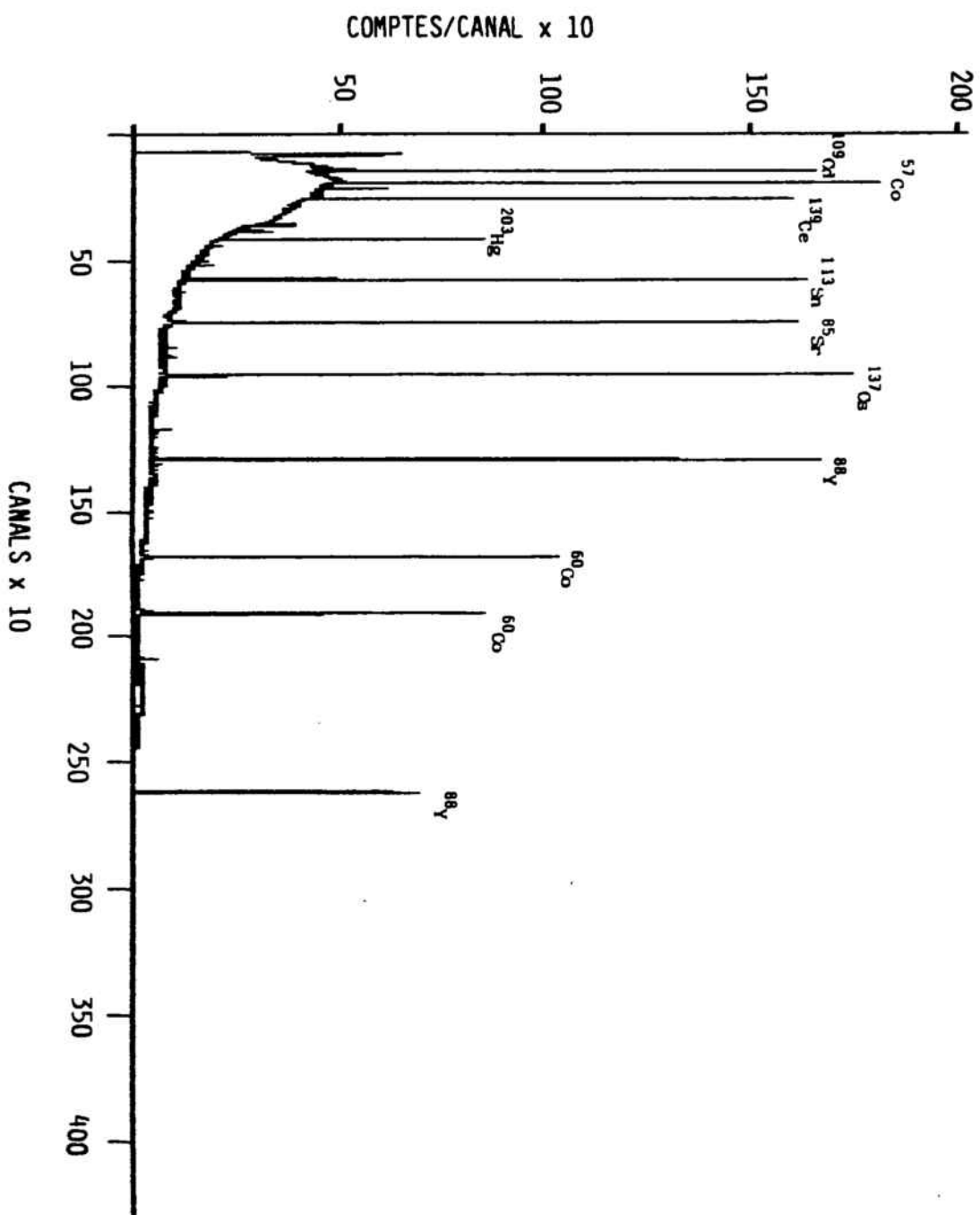


Figura 2.16. Espectre gamma correspondent a la geometria 2.

Una vegada transferides totes les dades de l'espectre al disc dur i utilitzant el programa d'ajust WABMB7 es realitza sobre les dades de l'espectre el calibratge en energies i el càlcul de l'àrea neta de cada fotopic, és a dir, el nombre de comptes netes per cada fotopic. Finalment, coneguda l'àrea neta de cada fotopic, es calcula l'eficiència absoluta de cada fotopic mitjançant l'expressió següent:

$$\% e_{\text{absoluta fotopic}} = \frac{C_i}{A t I_i}$$

on

A, és l'activitat real del radionúclid d'energia E_i expressada en dps (Bq).

t_i , és el temps de mesura en segons.

C_i , és el nombre de comptes netes del fotopic d'energia E_i .

I_i , és la intensitat absoluta del fotopic d'energia E_i .

Obtinguts els valors de l'eficiència absoluta per cada fotopic es tracta d'escollir una funció empírica que ens ajusti el millor possible aquests valors experimentals, per tal d'obtenir els valors d'eficiència absoluta per a tot l'interval d'energies de 80 a 2000 KeV.

A la bibliografia es troben descrites un gran nombre d'aquestes funcions empíriques aplicables segons les característiques físiques dels detectors (8,9). Mc Nells i Cambell (10) varen realitzar un estudi dels intervals d'aplicació de les diferents funcions proposades en la bibliografia. Molts autors solen dividir la corba d'eficiències en dos parts: una part correspon a la zona de energies baixes, on domina

l'efecte d'absorció de la radiació incident per part del material que hi ha entre la font i el detector i una altra part a energies superiors a 200 KeV on domina l'efecte de la secció eficaç d'interacció conforme augmenta l'energia del fotó. Això fa que molts autors prefereixin emprar dues funcions d'ajusts d'eficiències, una per cada zona, del tipus:

$$\ln(e_{\text{absoluta fotopic}}) = \sum_{j=1}^n a_j (\ln E)^{j-1}$$

Estudis realitzats per Baró i Sánchez-Reyes (7,11) per tal d'obtenir una funció empírica que ajusti el millor possible els valors d'eficiència obtinguts experimentalment a tot l'interval de treball d'energies emprat en radiologia ambiental (80-2000 KeV) ens varen portar a la funció següent:

$$\ln(e_{\text{absoluta fotopic}}) = a_1 - (a_2 + a_3 \exp(-a_4 E)) \exp(-a_5 E) \ln(E)$$

on

ef = eficiència

E = energia

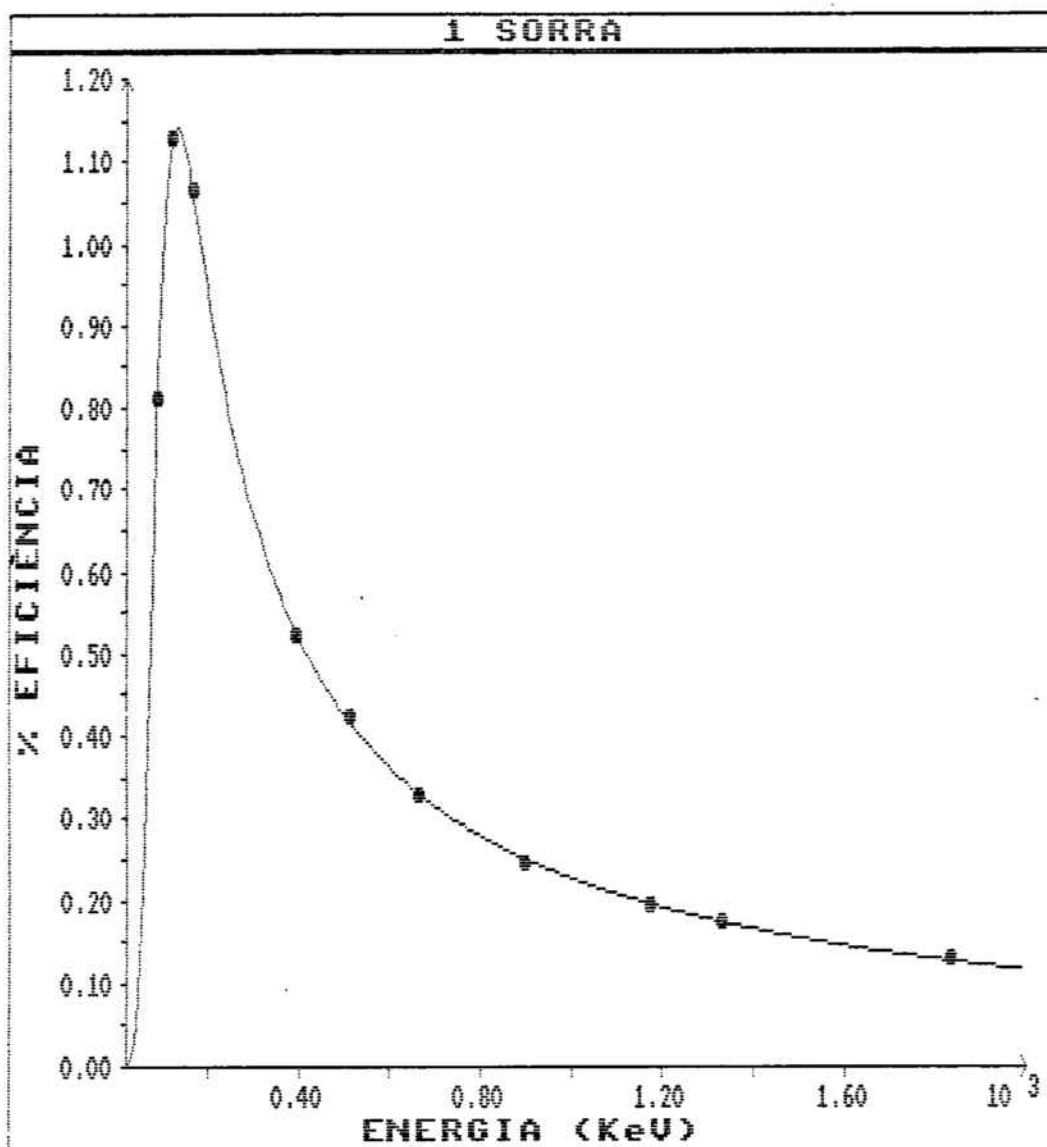
a_1, a_2, a_3, a_4, a_5 = paràmetres a ajustar.

Pel càlcul dels paràmetres d'aquesta funció s'ha emprat el programa Enzfitter (12). L'execució d'aquest programa ens dona també els valors estadístics de desviació estàndard i desviació estadística de

Poisson.

A les figures 2.17-27 es mostren les corbes d'eficiència obtingudes per a les diferents geometries i els paràmetres d'ajust corresponents.

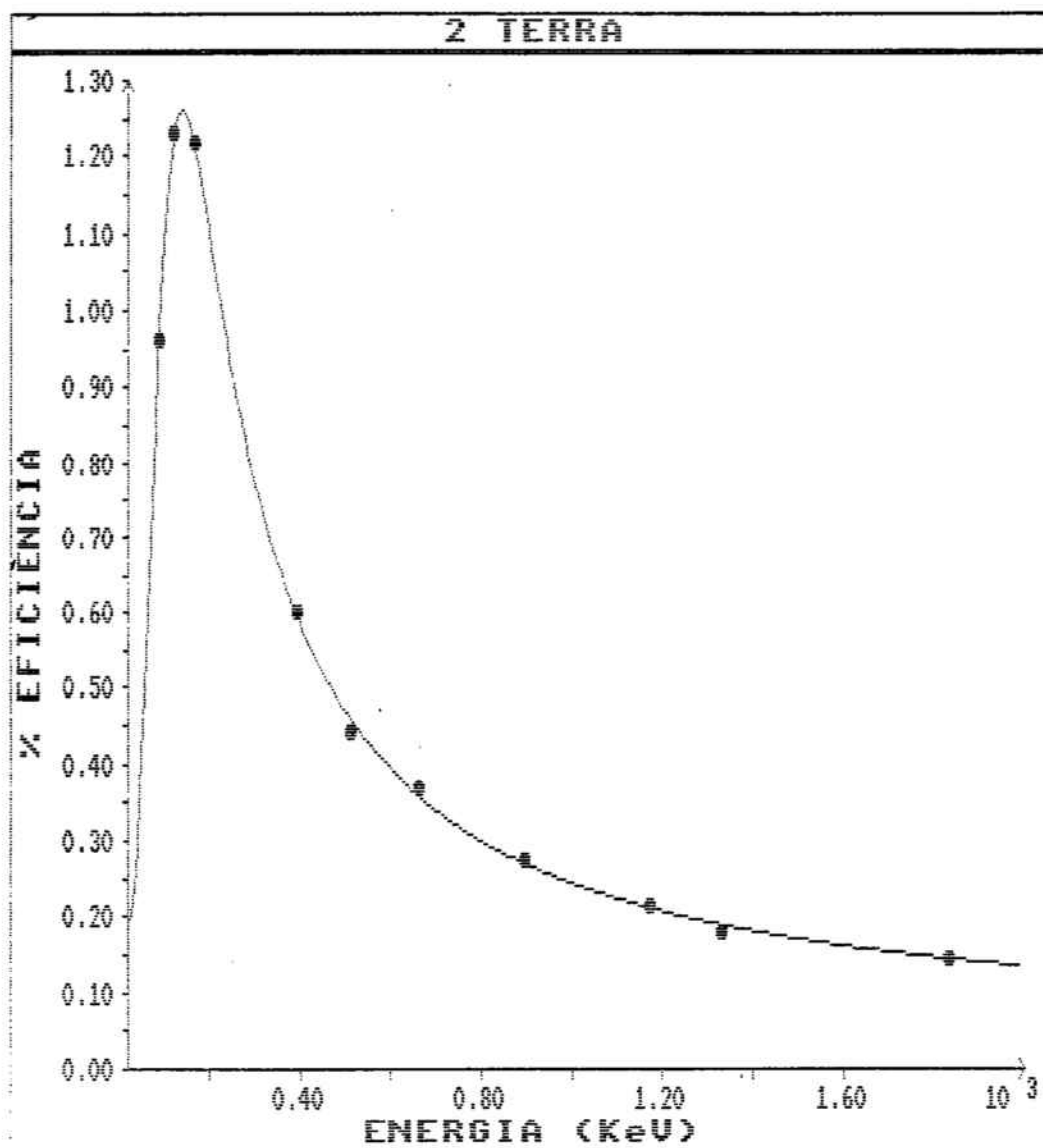
Com es pot observar la funció del calibratge en eficiències emprada pel nostre laboratori ajusta molt bé tot l'interval d'energies de treball en radiologia ambiental i els errors estan repartits uniformement per tot l'interval d'energies.



PARÀMETRES 1 SORRA

EFICIÈNCIES

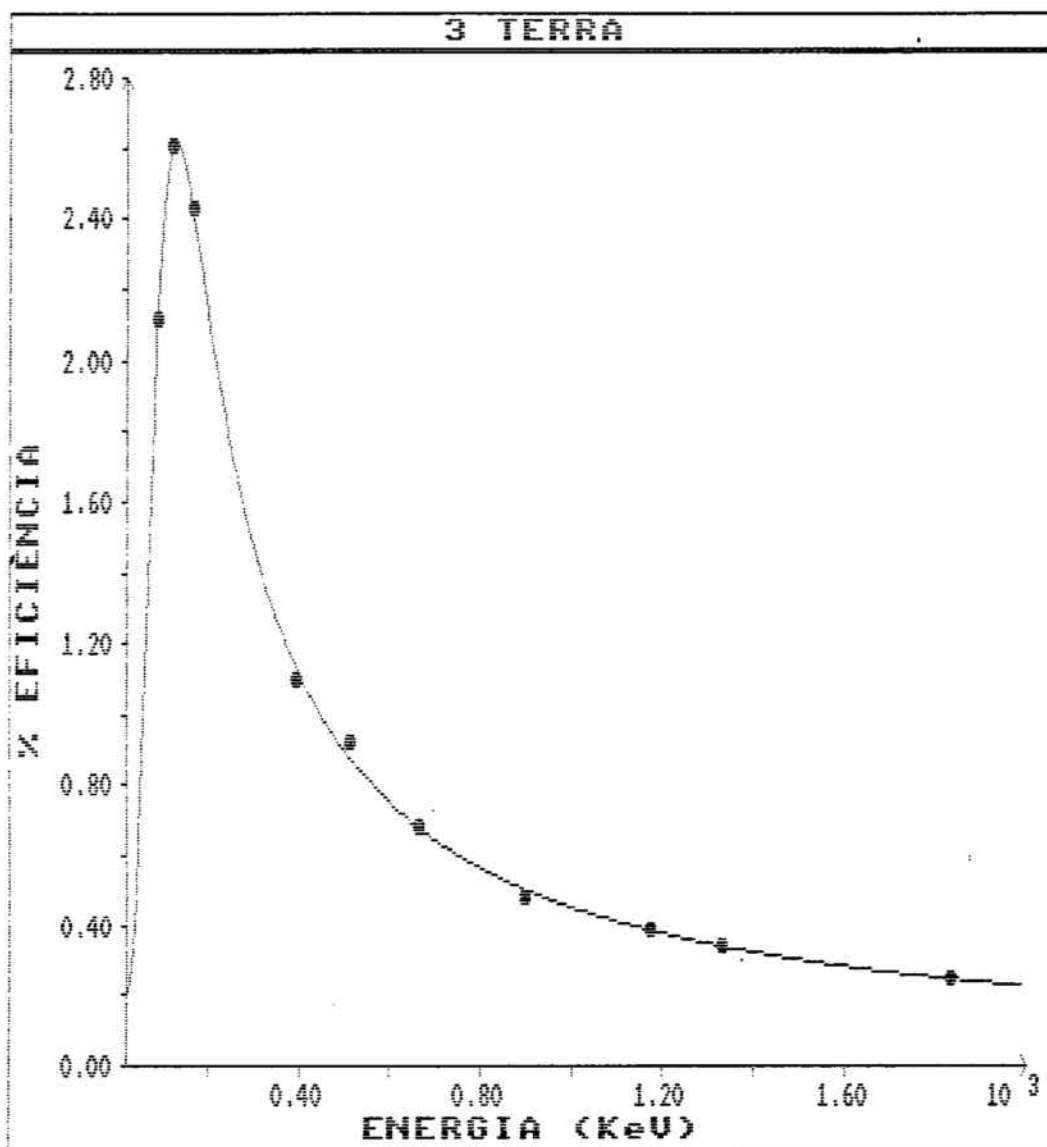
Variable	Value	Std. Err.
A1	4.54498E+00	1.19188E-01
A2	8.65289E-01	2.24232E-02
A3	5.38554E+00	5.62479E-01
A4	3.76751E-02	1.40988E-03
A5	8.77854E-06	6.43967E-06



PARÀMETRES 2 TERRA

EFICIÈNCIES

Variable	Value	Std. Err.
A1	5.62619E+00	2.94282E-01
A2	1.03531E+00	5.35061E-02
A3	2.36182E+00	2.40926E-01
A4	2.63664E-02	1.69818E-03
A5	-1.6250E-05	1.01782E-05

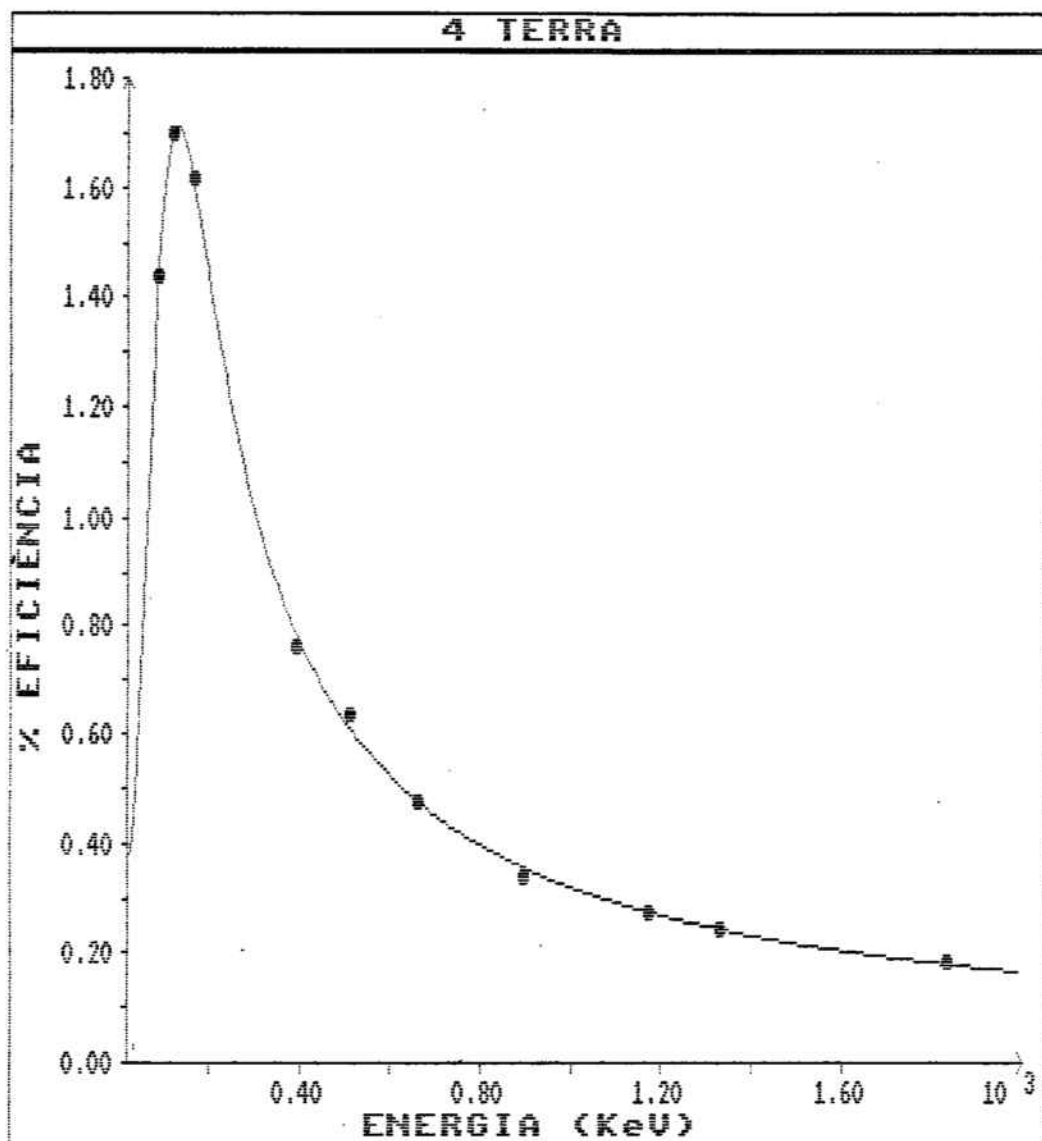


PARÀMETRES 3 TERRA

EFICIÈNCIES

Variable	Value	Std. Err.
A1	5.95920E+00	3.42931E-01
A2	9.75768E-01	6.37066E-02
A3	2.91308E+00	5.88132E-01
A4	3.11433E-02	3.01345E-03
A5	1.86566E-06	1.53463E-05

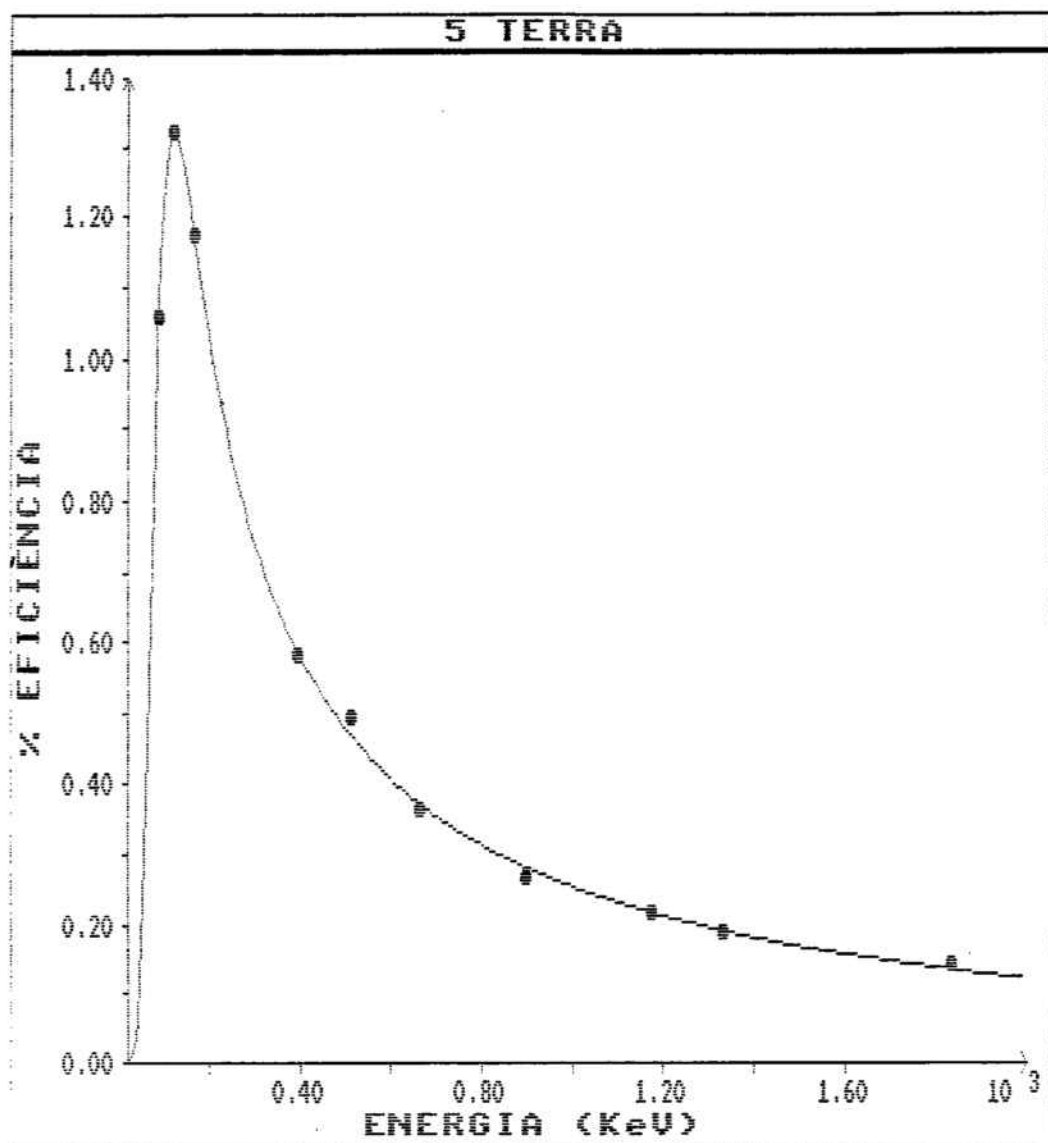
4 TERRA



PARÀMETRES 4 TERRA

EFICIÈNCIES

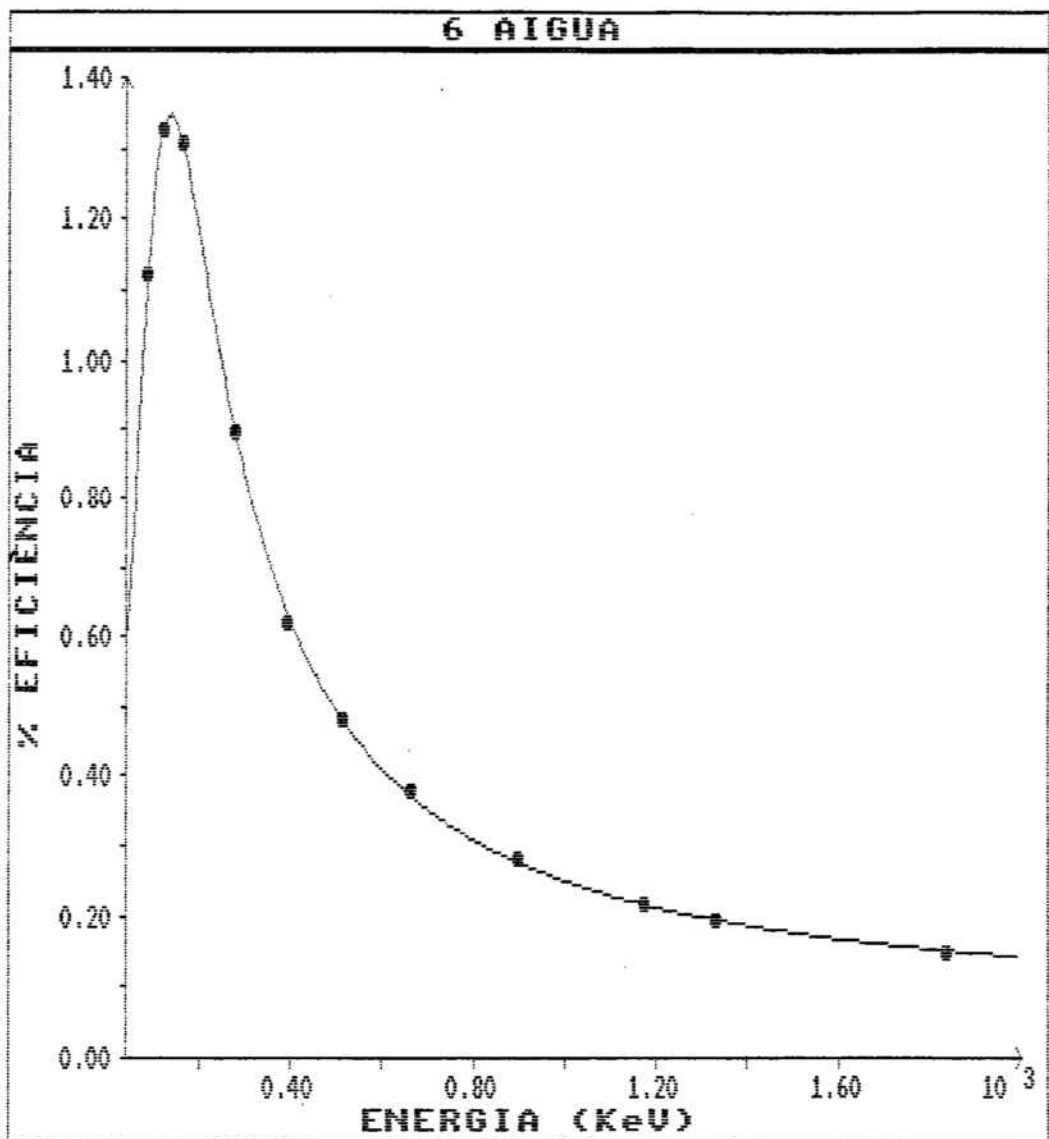
Variable	Value	Std. Err.
A1	5.54938E+00	3.80848E-01
A2	9.70354E-01	6.95132E-02
A3	2.09070E+00	3.51026E-01
A4	2.73364E-02	2.77290E-03
A5	-2.0035E-06	1.51583E-05



PARÀMETRES 5 TERRA

EFICIÈNCIES

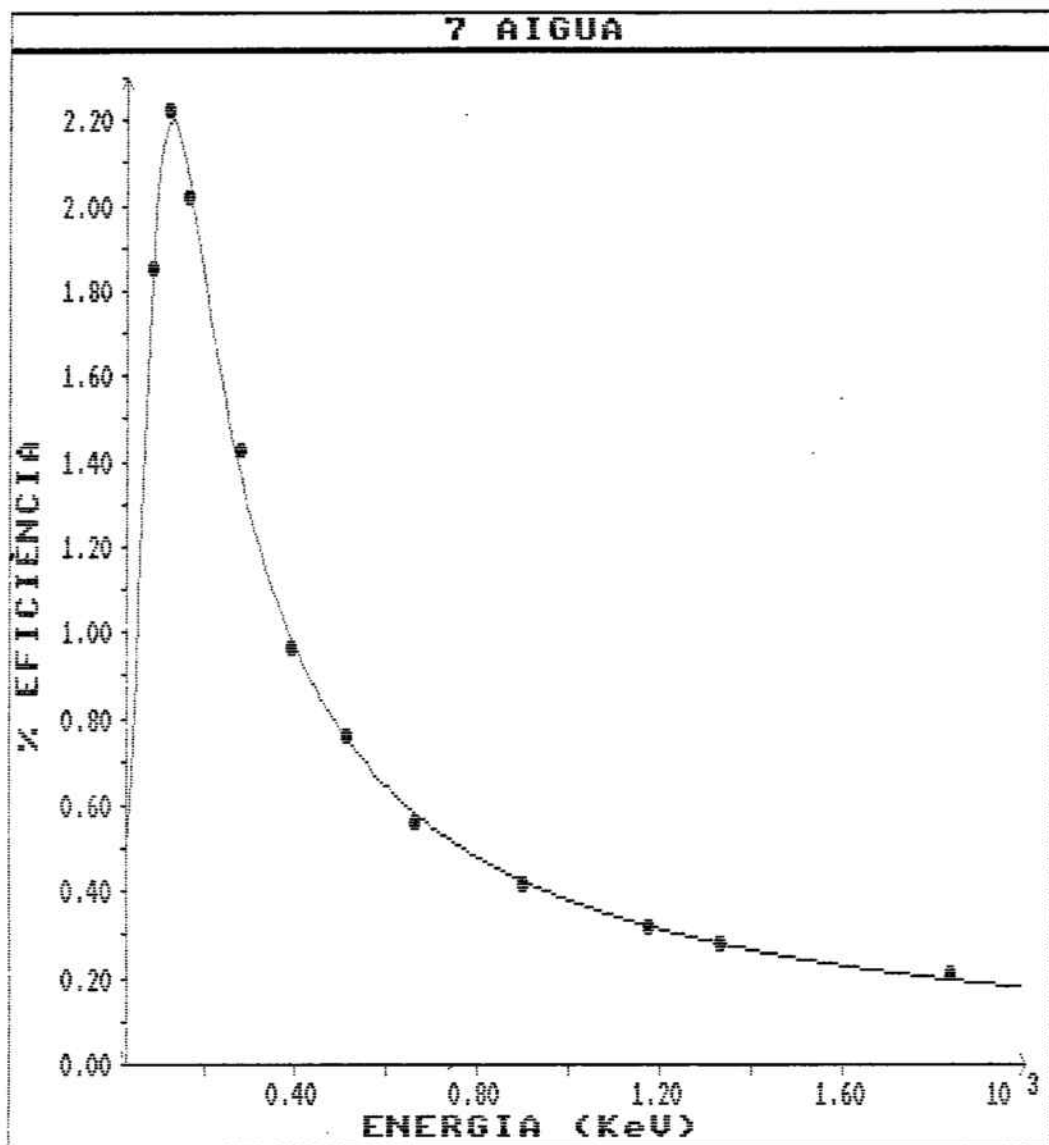
Variable	Value	Std. Err.
A1	4.28187E+00	2.47418E-01
A2	7.97399E-01	4.70778E-02
A3	6.29540E+00	2.28600E+00
A4	4.29350E-02	4.78826E-03
A5	2.57176E-05	1.60509E-05



PARÀMETRES 6 AIGUA

EFICIÈNCIES

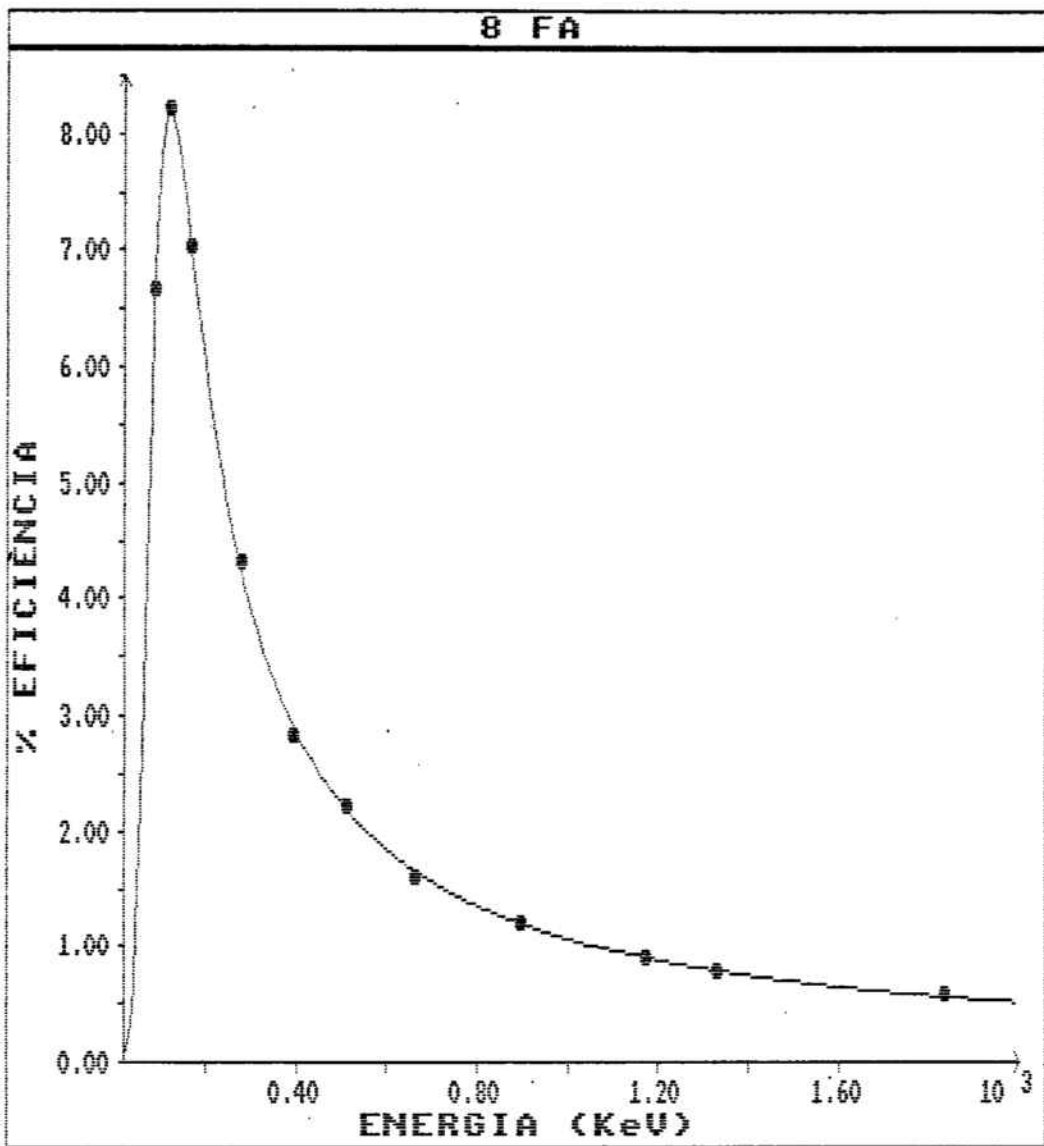
Variable	Value	Std. Err.
A1	6.17155E+00	1.91399E-01
A2	1.12002E+00	3.50223E-02
A3	1.72789E+00	6.22799E-02
A4	2.26659E-02	7.13550E-04
A5	-2.3534E-05	5.93947E-06



PARÀMETRES 7 AIGUA

EFICIÈNCIES

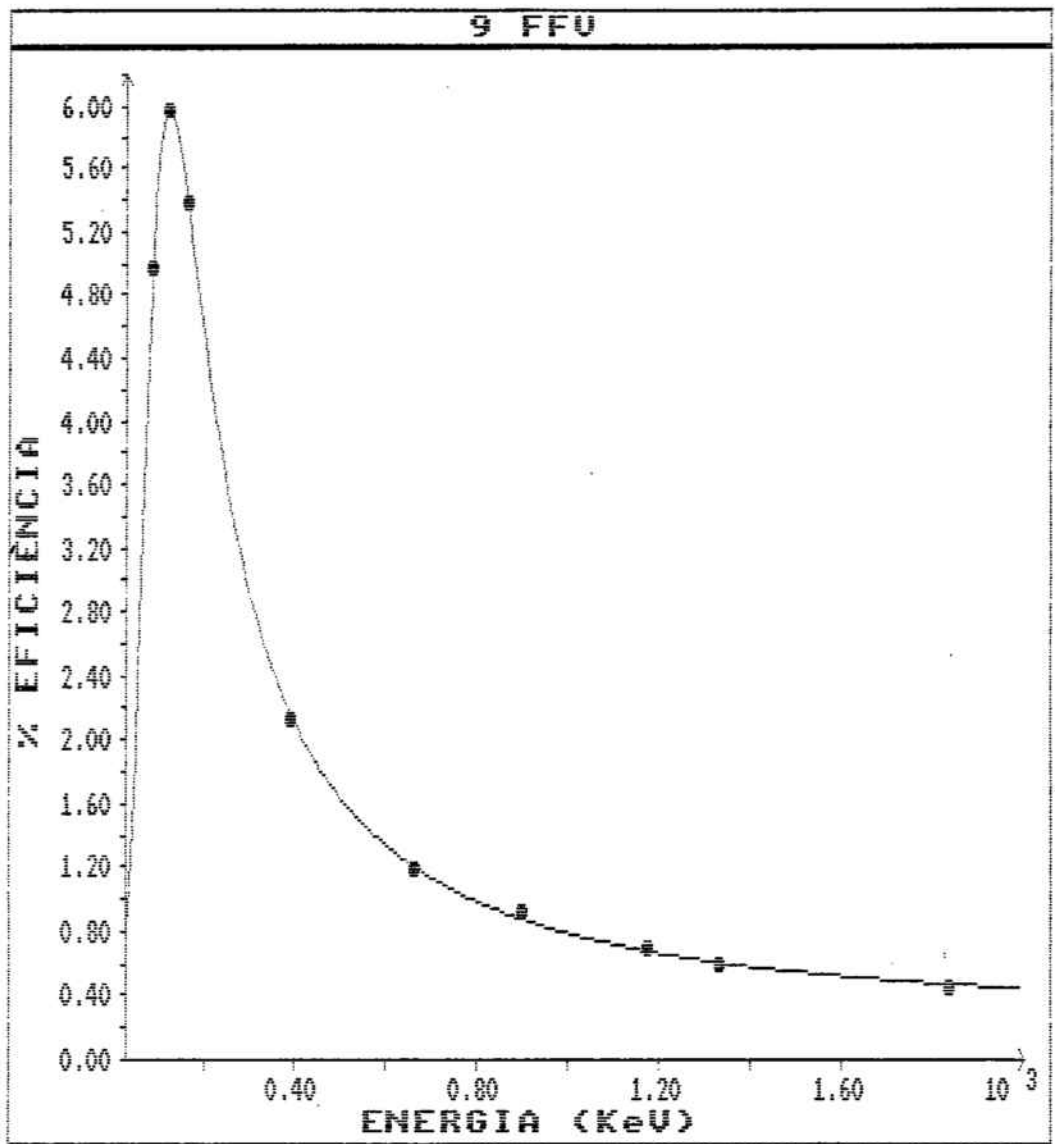
Variable	Value	Std. Err.
A1	5.78073E+00	4.93883E-01
A2	9.66592E-01	9.16550E-02
A3	2.16012E+00	4.37537E-01
A4	2.79318E-02	3.32096E-03
A5	1.04492E-05	2.23477E-05



PARÀMETRES 8 FA

EFICIÈNCIES

Variable	Value	Std. Err.
A1	7.62809E+00	2.09736E-01
A2	1.09998E+00	4.01667E-02
A3	4.83304E+00	8.22328E-01
A4	3.73854E-02	2.32391E-03
A5	-4.1656E-06	1.01194E-05



PARÀMETRES 9 FFV

EFICIÈNCIES

Variable	Value	Std. Err.
A1	8.15464E+00	2.21451E-01
A2	1.25167E+00	4.17701E-02
A3	2.95210E+00	2.39872E-01
A4	2.97471E-02	1.30837E-03
A5	-2.9699E-05	7.13338E-06

2.3.3 RESOLUCIÓ EN ENERGIES.

La resolució en energies és la capacitat de diferenciar dos fotopics d'energies molt pròximes. En un sistema de detecció, depèn del nombre de portadors de càrrega generats per cada succés, de les variacions en l'eficiència de col·lecció de càrregues i de la contribució del soroll electrònic (1). El que domini un d'aquests factors depèn de l'energia de la radiació i de la grandària i qualitat del detector que hom empli. A baixes energies, el soroll electrònic del sistema és el factor predominat i té importància la grandària del detector. A altes energies, és l'efecte estadístic i la captura dels portadors de càrrega els efectes predominants i en aquest cas la grandària del detector té menys importància.

La resolució en energies o el poder de resolució d'un detector de radiació gamma es defineix com l'amplada d'un fotopic a la meitat de la seva alçada màxima i s'expressa per FWHM ("Full Width at Half Maximum") i depèn de l'energia de la radiació incident. Això fa que sigui necessari emprar un fotopic patró per a la mesura d'aquest paràmetre de qualitat. Pels detectors de semiconductor la resolució en energies es dona referida al fotopic de 1333 KeV del ^{60}Co . Per a la seva determinació s'empra una font puntual de ^{60}Co situada a 25 cm del capçal del detector.

A la figura 2.28 es mostra la forma del fòtic, com es pot veure la forma d'aquest és gausiana i l'àrea representa el nombre de portadors de càrrega generats en el detector al interaccionar amb ell la radiació gamma d'una determinada energia (E_0).

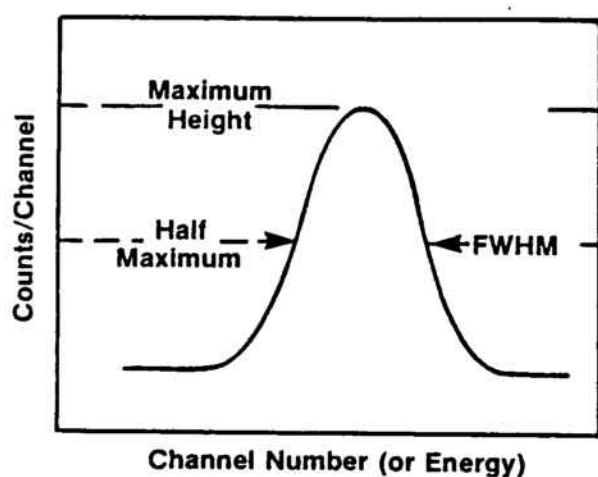


Figura 2.28. Forma de fòtic pel càlcul de la resolució en energies.

Els factors que afecten la resolució en energies els podem agrupar en tres grups: a) soroll estadístic, degut al caràcter discret del senyal; b) petites variacions de les condicions de treball de la cadena de detecció durant la mesura i c) fonts de soroll degudes al propi detector i a la instrumentació electrònica. Aquests tres factors produeixen

fluctuacions de l'energia del fòton i això fa que el fòton tingui una certa amplada. Escollint una bona electrònica i materials de primera qualitat pels detectors hom pot minimitzar els efectes citats en b) i c). Els de l'apartat a) són inherents al propi procés de detecció, essent una fluctuació irreductible. Aquestes fluctuacions provinents del soroll estadístic són degudes a que la càrrega alliberada en el detector adquireix valors discrets i a que l'energia necessària per a alliberar cadascun d'aquests electrons presenta una certa fluctuació. Com més petit sigui el nombre de fluctuacions millor serà la capacitat del detector per distingir dos radiacions d'energies molt pròximes.

En el present treball el càlcul de la resolució en energies ha estat realitzat mitjançant un programa, "Càlcul Resolució" (13). Aquest programa fa un escombratge del fòton de 1333 KeV del ^{60}Co i calcula així FWHM. En l'anex 2.1 hom mostra aquest programa.

El valor de resolució obtingut pel detector emprat en aquest treball va ésser de 3.72 KeV/canal en el mes de Juny de 1989, el qual comparat amb l'obtingut en el mes de Març de 1985, de 2.3 KeV/canal i amb el valor certificat en la compra del detector, de 2 KeV/canal, permet concloure que hi ha una clara disminució en la resolució del nostre detector. Una possible explicació és el deteriorament del cristall de Ge(Li) degut a una deformació de la seva xarxa cristal·lina provocada per les radiacions rebudes. El mes d'octubre de 1989 el

deteriorament va ésser tal que hom va procedir a efectuar un canvi del cristall de Ge(Li) per un Ge intrínsec. Les característiques del qual estan descrites en l'apartat 2.1.3.

2.4 TRACTAMENT DE LES DADES. CÀLCUL DE L'ACTIVITAT.

El programa emprat per a l'ajust d'espectres i pel càlcul d'activitats és el WABMB7 FORTRAN, el qual està fet a partir dels programes ABAC (15, 16), SAMPO-80 (17) i aportacions pròpies. Aquest programa llegeix les dades de l'espectre de la mostra problema, crida la llibreria WABMB FON on hi ha enmagatzemada la relació canal-energia dels fotopics que surten practicament a tots els espectres (31 fotopics) de mostres ambientals. El programa, primerament, troba la posició del pic en canals del espectre problema. Si la diferència entre la posició del pic en canals i un pic de la llibreria WABMB FON és inferior a una certa cota prefixada, el programa adjudica l'energia d'aquest pic de la llibreria al pic de l'espectre problema. Una vegada trobats tots els pics de l'espectre problema, mitjançant un ajust per mínims quadrats el programa troba els coeficients del polinomi d'ajust canal-energia. Seguidament crida la llibreria WABMB3 BIBL, on hi ha enmagatzemats amb ordre decreixent d'energies al voltant de mil radionúclids, amb la seva intensitat absoluta d'emissió i la seva vida mitja. Les dades d'aquesta llibreria han estat tretes de la taula d'isòtops Lederer (18).

Amb l'ajut d'aquestes dues llibreries el programa ens identifica els pics de l'espectre de la mostra problema, ens diu quin radionúclid és, calcula l'energia corresponent, l'àrea neta de cada fotopic i la desviació estàndard, el canal del centre del pic i els canals que ens ocupa cada

fotopic.

Els algoritmes per a identificar els fotopics funcionen a partir de detectar canvis de pendent en l'espectre (15) i la desviació estàndar de cada fotopic es calcula pel mètode de Covell (19).

Totes aquestes dades les obtenim mitjançant el llistat de sortida anomenat **RESUL** **RESUL**.

Una vegada identificats tots els fotopics presents en l'espectre el programa també té en compte la contribució del fons. Així, a l'espectre de la mostra problema se li resta l'espectre corresponent al fons del detector. Una vegada finalitzat aquest càlcul i calculades les seves àrees netes es du a terme la quantificació de l'espectre.

Per tal de dur a terme aquesta quantificació juntament amb les dades de l'espectre s'introdueixen una sèrie de dades necessàries per a la quantificació, tals com:

- * Temps de mesura: el temps en segons que s'ha estat mesurant la mostra.
- * Temps d'espera: el temps en dies des de la presa de mostra fins a la mesura d'aquesta. Aquest temps té molta importància a l'hora de la quantificació de radionúclids amb una vida mitjana curta.
- * Temps de presa de mostra: en dies, pel cas de les mostres que la

seva recol.lecció té una durada de varies hores o fins i tot dies, com és el cas de la recol.lecció d'aerosols atmosfèrics.

* Quantitat de mostra: la quantitat de mostra analitzada, en Kg en el cas de mostres de terres o sorres , en m³ en el cas d'aerosols atmosfèrics i en l en el cas de mostres líquides.

* Tipus de geometria: per tal que el programa empri els paràmetres del calibratge en eficiències corresponents a la geometria emprada en la mesura.

Amb totes aquestes dades anteriors, el % d'emissió de cada fotopic, l'eficiència del detector, etc... el programa ens calcula l'activitat de cada radionúclid contingut en la mostra a analitzar i llur desviació estàndard. Els resultats per cada fotopic són expressats per llur activitat específica més dues vegades la desviació estàndard.

Finalment el programa calcula els límits de detecció i els límits inferiors de detecció de cada fotopic seguint el mètode de Currie (20, 21).

Primerament es calcula el L_c , límit crític o de desició el qual quan és excedit per una mostra, informarà (amb el nivell de confiança exigít) que existeix radioactivitat per sobre del nivell ambiental. Aquest es calcula segons:

$$LC = \frac{I_c}{T_s} = \frac{K (N_c + N_b + \sigma_c^2 + \sigma_b^2)^{1/2}}{T_s}$$

Seguidament es calcula L_D , el límit de detecció el qual ens estableix la quantitat mínima de material radioactiu que ha d'estar present en una mostra per assegurar, amb el nivell de confiança exigít, que la radioactivitat present serà detectada. El límit de detecció ens dóna la sensibilitat del mètode. Aquest es calcula segons:

$$L_D = \frac{K^2 + 2 I_c}{T_s}$$

on

$K = 1.65$ per al nivell de confiança del 95 %.

N_c = nombre de comptes del fons Compton.

N_b = nombre de comptes del fons, sense el seu fons Compton.

σ_c = desviació estàndard de N_c .

σ_b = desviació estàndard del fons.

T_s = temps de comptatge de la mostra.

Pel càlcul d'aquests límits es normalitzen les comptes per minut (c.p.m) de la mostra i del blanc al temps de mesura de la mostra T_s ; ja que en espectrometria gamma, generalment, el temps de comptatge del blanc i de la mostra són diferents.

Finalment calcula el límit inferior de detecció (LLD) segons l'expressió següent:

$$LLD = \frac{L_D}{P T Y E}$$

on

L_D = límit de detecció.

P = quantitat de mostra.

T = temps de comptatge.

Y = intensitat d'emissió de la radiació gamma.

E = eficiència de detecció.

Cal tenir en compte que quan algun radionúclid es trobi també en l'espectre del fons del sistema de detecció, augmenta el valor del límit de detecció i per tant del límit inferior de detecció, en haver de calcular la diferència entre l'àrea neta del pic del fons més l'àrea del fotopic de la mostra, i l'àrea neta del fons. Com més petites siguin les interferències del fons radioactiu del laboratori, més sensibles serà el sistema de detecció, raó per la qual el detector està introduït a l'interior d'un blindatge.

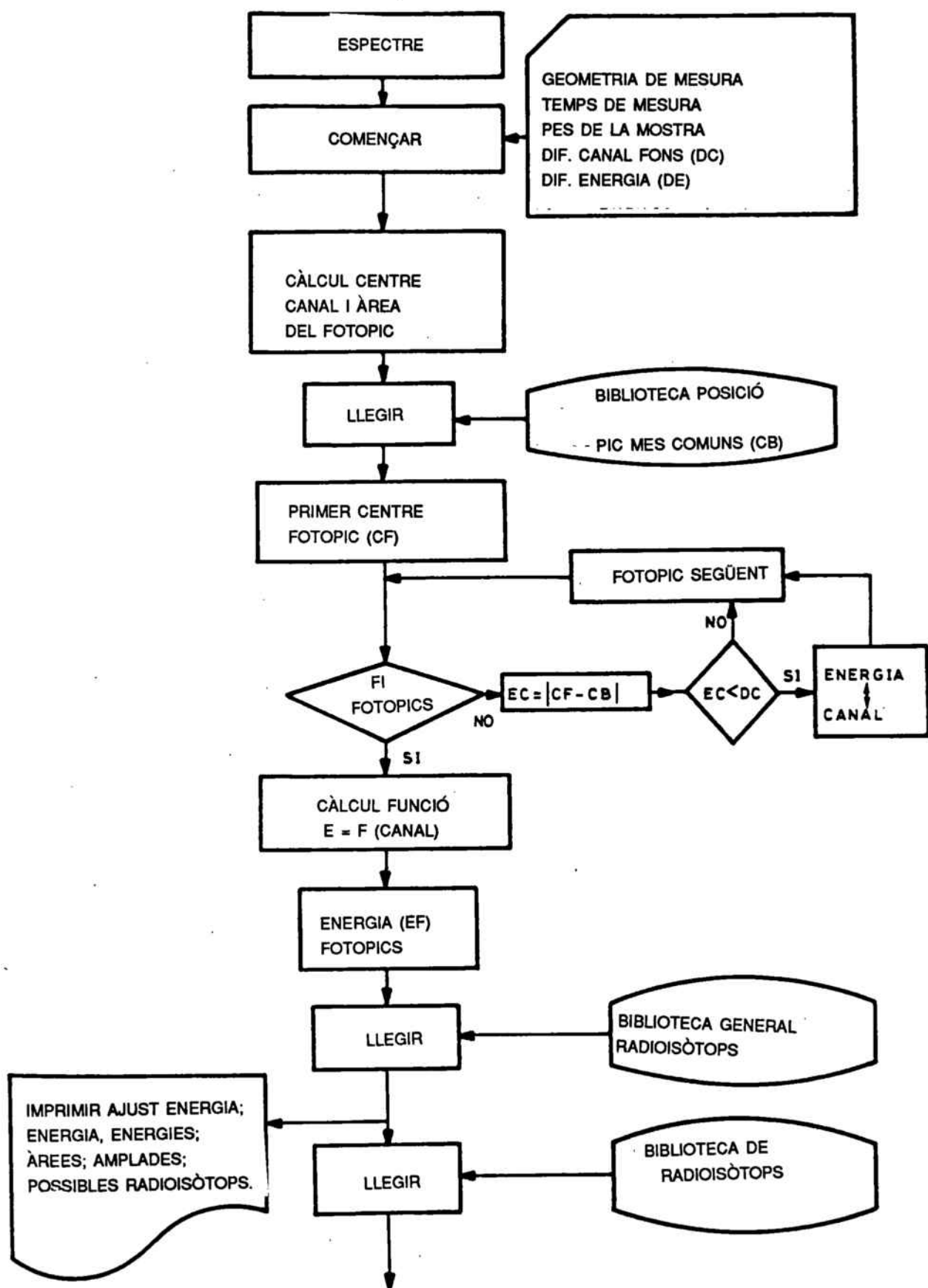
A més, el límit inferior de detecció disminueix al augmentar el temps de comptatge i la quantitat de mostra. Aquest també depèn del nivell de confiança, com més gran sigui el nivell de confiança exigít més gran serà el límit inferior de detecció; i finalment, també depèn de l'eficiència del detector i per tant de la geometria emprada en la mesura.

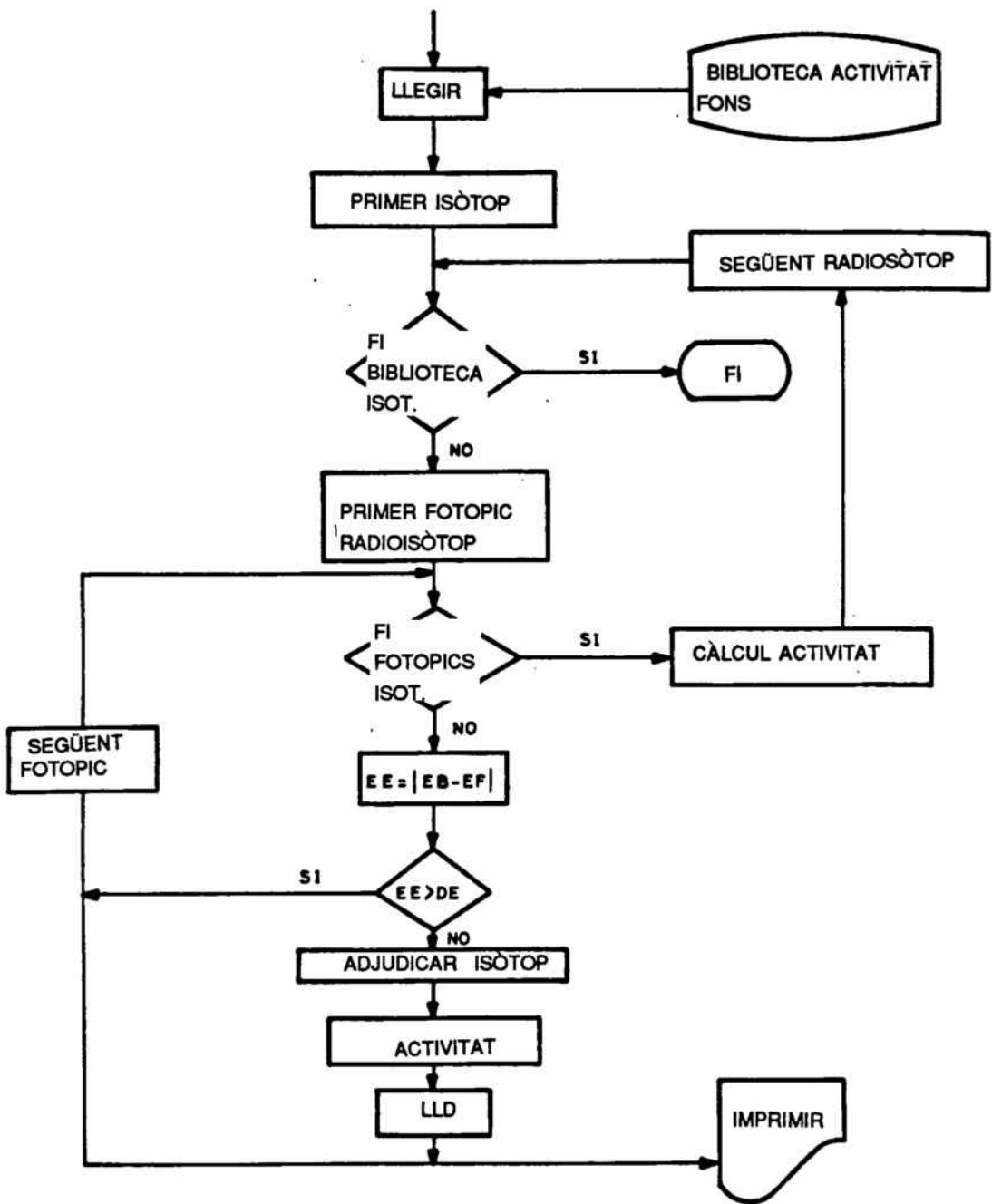
El límit inferior de detecció (LLD), en espectrometria gamma, a més de ser funció del fons radioactiu del laboratori també és funció del fons

Compton de la mostra, el qual és diferent per cada tipus de mostra i per tant els límits de detecció per a un mateix radionúclid seràn diferents d'una mostra a una altra.

En les pàgines següents hom hi adjunta un diagrama de flux explicatiu del funcionament del programa d'ajust d'espectres.

En general, els errors comesos en la preparació de les mostres són negligibles envers el propi error de mesura.





2.5 BIBLIOGRAFIA.

(1) Knoll, G.F., "Radiation and Measurements". Ed. John Wiley & Sons. (1979). ISBN 0-471-49545-X.

(2) Tsoufanidis, N., "Measurement and Detection of Radiation". Ed. Mc. Graw-Hill. (1983). ISBN 0-89116-523-1.

(3) Camp, D.C., Gatrousis, C. and Maynard, L.A., Nucl. Inst. and Meth. 117,189 (1974).

(4) Garzon, L., "Radioactividad del medio ambiente." Ed. Alhambra 1980.

(5) González, J.A., "Methods of low-level counting and spectrometry". International Atomic Agency. Viena 1981.

(6) Philipot, J.Cl., "Automatic processing of diode spectrometry results". IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-17(3), juin 1970, 446-448.

(7) Baró, J. "Espectroscòpia alfa i gamma: detecció i calibració". Tesi de Llicenciatura. Fac. Ciències Físiques. Universitat de Barcelona. 1985.

(8) Kane,W.R., Mariscotti. "And empirical method for determining the

relative efficiency of Ge(Li) detectors.", Nucl. Instr. Meth. 136:543-549 (1967).

(9) Coursey, B.M., Hoppes, D.D., Schima, F.L., "Determination of the photon emission rates of the NBS long-lived mixed-radionuclides standard.", Nucl. Instr. and Meth. 193:1-8 (1985).

(10) McNelles, L.A. and Campbell, J.L., "Absolute Efficiency Calibration of Coaxial Ge(Li) Detectors for the Energy Range 160-1330 keV". Nucl. Instr. and Meth.,109:241-251. (1973).

(11) Sánchez-Reyes, A.F., Febrian, I., Baró, J. and Tejada, J., "Absolute efficiency calibration function for the energy range 63-3054 KeV for coaxial Ge(Li) detector.", Nucl. Instr. and Meth. B 28:123-127 (1987).

(12) Leatherbarrow, R.J., "Enzfitter. A non-linear regression." Ed. Elsevier Science Publishers BV. Amsterdam. (1987).

(13) Baró, J. Comunicació personal. (1989).

(14) Labarta, A. Comunicació personal. (1985).

(15) Atkinson, G.D., Whitworth, J.B. and Gage, S.I., "Computer assisted

analysis of gamma-ray spectra.", Computer Physics Communications. 2:40-46. (1971).

(16) Zlokazov, V.B., "Activ-A Program for Automatic Processing of Gamma-ray Spectra", Computer Physics Communications. 28:27-40. (1982).

(17) Kostelo, M.J., Aarnio, P.A. and Routti, J.T., "Sampo 80: An accurate gamma spectrum analysis method for microcomputers.", Nucl. Instr. and Meth. 190:89-90, (1981).

(18) Lederer, "Table of isotopes." Ed. John Wiley and Sons. (1981).

(19) Covell, Anal. Chem., 31 1578 (1959).

(20) Currie, L.A. "Limits for qualitative detection and quantitative determination.", Anal. Chem. 40, 586-593, (1968).

(21) Sánchez-Mayoral, M.L., Robles, M., Navarro, E. y Senent, F.

"El problema de los límites de detección en espectrometría gamma".
Anales de Física, Serie B, Vol. 81 (1985).

(22) Manual EG&G Ortec. Solid-State Photon Detector. Operators Manual. 100 Midland Road, Oak Ridge, TN 37830 USA, 1989.

CAPÍTOL 3.

**DETERMINACIÓ D'EMISSORS GAMMA EN ELS
AEROSOLS ATMOSFÈRICS CAPTATS A L'ÀREA
METROPOLITANA DE BARCELONA.**

3.1 INTRODUCCIÓ.

En aquest capítol hom estudia la radioactivitat de la matèria particulada en l'Àrea Metropolitana de Barcelona durant un període de temps que comprèn els dies després de l'accident de la Central Nuclear de Txernòbil.

L'accident de la Central Nuclear de Txernòbil, a la regió soviètica d'Ucraïna, el 25 d'Abril de 1986, va introduir una gran quantitat de radionúclids a l'atmosfera. Aquests contaminants radioactius varen ser emesos en diferents formes segons el moment de l'accident, depenent fonamentalment de la temperatura en el moment de l'emissió, ja que primerament va tenir lloc una explosió i seguidament es va produir un incendi.

Els productes radioactius, eliminats a l'atmosfera durant uns dies després de l'accident, varen seguir trajectories diferents segons les condicions meteorològiques pol·luïnt així gran part de l'hemisferi nord. Els primers països en detectar un fort augment de radioactivitat en l'aire varen ésser els escandinaus i posteriorment el núvol radioactiu es va traslladar a Europa. A la Península Ibèrica, la part més afectada va ésser el litoral mediterrani (1). La primera arribada del núvol radioactiu es va detectar els dies 30 d'Abril i 1 de Maig, obtenint-se els valors màxims de radioactivitat en l'aire els dies 4 i 5 de Maig. Cap al 20 de

Maig es va observar l'arribada d'una altra massa d'aire contaminat sobre el litoral mediterrani de menor intensitat que la primera.

Els contaminants radioactius a l'atmosfera poden estar o bé en forma gasosa o bé en forma d'aerosols. Aquests últims són formats per sistemes de partícules dispersades de diverses formes en l'aire (2):

a) en forma de pols: quan la grandària de les partícules sòlides formades en els processos de manipulació va des dels submicròmetres a varies decenes de submicròmetres.

b) en forma de vapors: formats en els processos de sublimació, combustió i condensació. Generalment la grandària de les partícules és inferior a 1 μm . Poden formar aquest tipus d'aerosol els vapors de Pb i els òxids de Zn, U, Be i Fe. Són els típics fums metal·lúrgics.

c) en forma de fums: els quals es caracteritzen perquè tenen una densitat òptica apreciable i generalment són d'origen orgànic (fusta, oli, fuels carbonosos), i, finalment,

d) en forma de boires: les quals es formen per condensació del vapor i atomització de líquids. La grandària varia molt segons les condicions en les que ha tingut lloc la formació de la boira.

Un altre grup de contaminants radioactius en l'atmosfera, a part dels aerosols, és el format per gasos. Dins d'aquest grup de contaminants radioactius poden incloure's els gasos nobles (^{41}Ar , ^{133}Xe ,

^{135}Xe , ^{85}Kr , ^{220}Rn , ^{222}Rn , ^3H , ^{131}I i altres compostos volàtils ($^{14}\text{CO}_2$, $^{106}\text{RuO}_4$, $^{222}\text{Rn}, \dots$).

Els mètodes de presa de mostra per tal de dur a terme l'anàlisi dels contaminants radioactius a l'atmosfera són pràcticament els mateixos que els emprats per a la presa de mostra de material no radioactiu.

Així en el cas de voler analitzar els aerosols radioactius atmosfèrics s'empren mètodes de presa de mostra tals com la filtració, la impactació en cascada (en el cas de voler dur a terme un estudi segons la grandària dels aerosols radioactius) i la precipitació (emprada generalment en els estudis de deposició deguda als experiments nuclears a l'atmosfera o "fallout" i en estudis de resuspensió); en els cas de voler analitzar gasos generalment s'empren absorbents escollint el més adequat en cada cas, com ara els filtres de carbó actiu pel ^{131}I , la sílica gel pel ^3H o també solucions adequades com per exemple la solució de BaOH o KOH per a la presa de mostra de $^{14}\text{CO}_2$.

En les determinacions de radioactivitat ambiental en mostres d'aerosols atmosfèrics el mètode de presa de mostra més emprat és la filtració. Aquest mètode ens permet separar l'aerosol sòlid, la matèria particulada, del gas en el que està suspès, en aquest cas l'aire. Els

avantatges d'aquest mètode són la simplicitat, el baix cost, la versatilitat, la facilitat de guardar la mostra fins al moment de l'anàlisi, la facilitat de maneig de la mostra, la possibilitat de mesurar la matèria particulada sense necessitat de treure-la del paper de filtre i sobretot la possibilitat de mostrejar grans volums d'aire per tal de concentrar els aerosols atmosfèrics.

En la presa de mostra d'aerosols atmosfèrics per filtració, l'aerosol és recollit sobre un paper de filtre. Hi ha una gran varietat de papers de filtre amb un ampli ventall de propietats i de grandàries de porus presentant tots ells una sèrie d'avantatges i de desavantatges els quals caldrà sospesar alhora d'escollir el paper de filtre adient per a l'estudi que hom vulgui realitzar posteriorment (3). La selecció d'un determinat tipus de filtre depèn de molts factors, tals com: el cost, la disponibilitat, l'eficiència de col·lecció, els requeriments deguts als processos analítics i de la capacitat que el filtre mantingui les propietats i la integritat física del filtrat sota les condicions de la presa de mostra.

Pel que fa al cost, hom troba una gran variació d'un filtre a un altre, disminuint el preu dels filtres de membrana als filtres de barreja de cel·lulosa-asbest i fibra de vidre fins als de fibra de cel·lulosa. Això fa que per programes amb número elevat de preses de mostra sigui, el cost, un factor important.

Pel que fa a l'eficiència de col.lecció, cal distingir entre l'eficiència de col.lecció de partícules i l'eficiència de col.lecció de massa. La primera es refereix a una fracció del nombre total de partícules, mentre que la segona es refereix a una fracció de la massa total de partícules. Aquestes eficiències són equivalents numèricament quan la grandària de les partícules és la mateixa. En molts casos l'eficiència de col.lecció de massa és més gran que l'eficiència de col.lecció de partícules i generalment es treballa amb eficiència de col.lecció de massa. L'eficiència de col.lecció és funció de la grandària de les partícules i de la velocitat de filtració: com més gran és la velocitat de filtració i com més grans són les partícules més gran es l'eficiència de col.lecció, tal com es pot veure en la figura 3.1 (4), on es mostra l'eficiència de col.lecció vs. la velocitat de filtració per diferents grandàries de partícules emprant un determinat tipus de filtre. Hi ha un gran nombre d'estudis realitzats sobre l'eficiència de col.lecció de partícules d'una determinada grandària a diferents velocitats de filtració per a diferents tipus de filtres (4-9) i inclús sobre els efectes de la temperatura en l'eficiència de col.lecció (10). Cal tenir en compte que tots aquests estudis estan realitzats emprant filtres nets i que l'eficiència de col.lecció augmenta amb l'acumulació de partícules sòlides en la superfície del filtre (11,12) per tant, aquestes eficiències de col.lecció seràn les mínimes. Cal dir també que com més petita és la penetració de les partícules en el filtre més gran és l'eficiència de col.lecció (11).

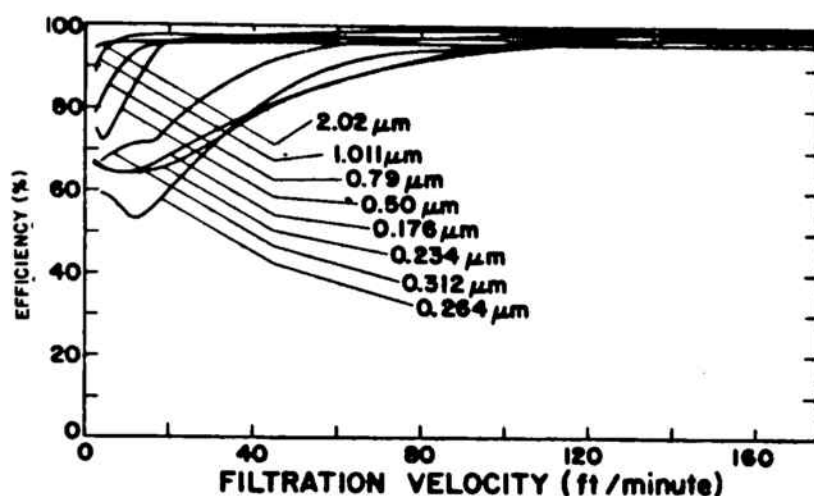


Figura 3.1. Eficiència de col·lecció vs. velocitat de filtració per a diferents grandàries de partícula, emprant el filtres de fibra de cel·lulosa Whatman No.41.

Pel que fa als requeriments dels procediments analítics, generalment cal fer la presa de mostra d'un volum gran d'aire per tal de que el material col·lectat sigui suficient per a l'anàlisi posterior i que la col·lecció de la mostra sigui homogènia durant tot el període de presa de mostra. Per a molts tipus d'anàlisis cal que la mostra sigui col·lectada d'una determinada forma:

* Així, en el cas de determinar directament l'activitat α cal que l'aerosol col·lectat es trobi a la superfície del paper (13), és a dir, que la penetració de les partícules a l'interior del paper de filtre sigui molt

petita. Les partícules α són aturades fàcilment i això fa que el material que ha penetrat a l'interior del filtre no sigui detectat en la mesura. Els productes del decaïment de l'urani (plutoni, poloni i radó) són els radionúclids emissors α més importants que es determinen d'aquesta manera. La penetració del material radioactiu a l'interior del filtre té menys importància en el cas dels emissors β i no té cap importància en el cas dels emissors gamma.

* També en el cas d'una anàlisi de la grandària de les partícules per microscòpia cal que aquestes es trobin sobre la superfície del filtre i que la penetració sigui molt petita.

El tipus d'anàlisi final que hom vulgui realitzar en els aerosols atmosfèrics col·lectats determinarà el tipus de filtre a emprar. Per a moltes anàlisis químiques caldrà treure la mostra del filtre o destruir-lo. Així en el cas de voler dur a terme una anàlisi radioquímica incloent una separació caldrà treure primerament el material col·lectat sobre el filtre. En el cas d'emprar filtres de fibra de vidre, de barreja de cel·lulosa i fibra de vidre o d'asbest caldrà recórrer a la digestió emprant solucions àcides; en el cas d'emprar filtres de membrana de material orgànic o de fibra de cel·lulosa es pot dur a terme la separació de l'aerosol col·lectat sobre el filtre mitjançant una digestió àcida, dissolent els filtres amb certs dissolvents orgànics en alguns casos, per combustió en matràs tancat (14) o per calcinació.

Segons el tipus d'anàlisi a realitzar, també caldrà tenir en compte les possibles impureses del filtre.

Els filtres, tal com ja s'ha citat anteriorment, poden ésser de fibra o de membrana. Els filtres de fibra poden ésser de fibra de cel.lulosa, de fibra de vidre, barreja de fibra de vidre i cel.lulosa, barreja de cel.lulosa i asbest i fibra de plàstic. Els filtres de membrana generalment són fabricats a partir de productes orgànics tals com nitrat de cel.lulosa, triacetat de cel.lulosa, cel.lulosa regenerada, clorur de polivinil, nylon, polipropilè, copolímers de clorur de vinil i acetonitril, tefló. També existeixen els filtres de membrana de metall els quals són de plata. Una de les diferències més importants entre els filtres de fibra i els de membrana és que aquests últims tenen una grandària de porus molt controlada i es troben asequibles en moltes grandàries de porus diferents, tenen una eficiència de col·lecció més elevada i el seu cost és més elevat que els de fibra.

En el present estudi, per a la presa de mostra dels aerosols atmosfèrics s'ha emprat el mètode de filtració usant filtres de fibra de vidre en la majoria dels casos i els de membrana de cel.lulosa en altres, que com s'ha dit anteriorment són els més emprats en la col·lecció d'aerosols atmosfèrics, realitzant la mesura directa per espectrometria gamma d'alta resolució.

3.2 PRESA DE MOSTRA.

Hom va realitzar la presa de mostra dins de l'àrea metropolitana de Barcelona. A les poblacions de Barcelona, Santa Coloma de Gramanet i Montcada i Reixach. Pel que fa a la ciutat de Barcelona hom va realitzar la presa de mostra en dos punts diferents: un punt a l'Avinguda Diagonal (Facultat de Química) i l'altre punt a Plaça Molina.

La presa de mostra, excepte la del primer punt corresponent a la Facultat de Química, va ésser realitzada pel Servei de Control Ambiental de l'Àrea Metropolitana de Barcelona.

Hom va emprar dos models de captadors d'alt volum. En el punt de presa de mostra situat a l'Avinguda Diagonal hom va emprar un captador d'alt volum Sierra Misco, Inc. model 650, i els filtres emprats en aquest cas varen ésser els Millipore AAWP 810 d'acetat de cel.lulosa de 20 x 25 cm² amb una grandària de porus de 0.8 µm i els Whatman EPM 2000 de fibra de vidre. En els altres punts de presa de mostra hom va emprar els captadors d'alt volum MCV, model CAV-A/R, que formen part de la xarxa del Servei de Control Ambiental i els filtres emprats en aquest cas van ésser els de fibra de vidre Whatman GF/A de 20 x 25 cm².

Els temps de presa de mostra van ésser de 24 hores i el volum

d'aire mostrejat va ésser en cada cas al voltant de 1000 m³.

A la **figura 3.2** s'indiquen els punts de presa de mostra.

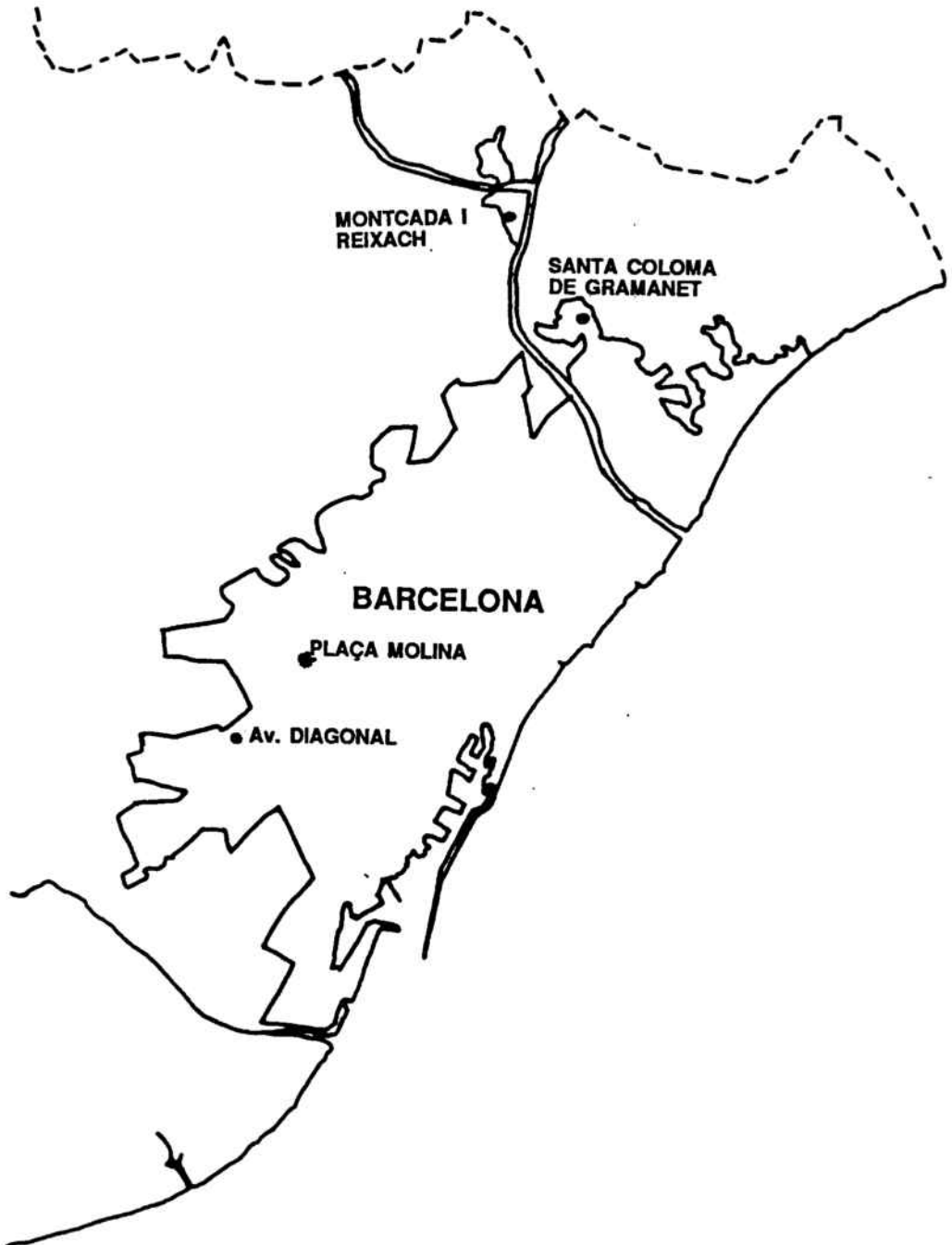


Figura 3.2. Punts de presa de mostra dels aerosols atmosfèrics.

3.3 ESTUDI DE LA GEOMETRIA EMPRADA PER A LA MESURA DELS FILTRES D'AEROSOLS ATMOSFÈRICS.

Hom va realitzar un estudi de l'eficiència de la mesura emprant diferents geometries. Primerament hom va escollir la geometria de 50 cm³ ja que una vegada doblegats els filtres, aquests ocupen pràcticament tot el volum de la geometria.

Seguidament hom va dur a terme l'estudi de l'eficiència pel filtre contingut en la geometria de 50 cm³ quan aquesta, per tal d'homogenitzar el medi, s'omplia amb solució de HCl 4 M i es va comparar amb l'eficiència obtinguda quan no s'omplia la geometria amb solució.

Per a dur a terme aquest treball hom va emprar un alíquota de la solució patró QCY.44, descrita en l'apartat 2.3 d'aquesta memòria. Una vegada doblegat el filtre i introduït en la geometria de 50 cm³ hom va addicionar l'alíquota de patró homogeneament sobre tot el filtre i seguidament en el cas de no emprar HCl 4M es va assecar la solució patró addicionada amb l'ajut d'una làmpada d'IR; en el cas del filtre amb solució hom va procedir a omplir la geometria amb HCl 4 M. Finalment es va mesurar l'activitat per espectrometria gamma d'alta resolució.

Hom va dur a terme aquest estudi pels filtres de fibra de vidre i pels d'acetat de cel.lulosa, realitzant el treball per duplicat a partir de dos vials que contenen una quantitat coneguda i diferent de solució mare pels filtres de fibra de vidre i dos més pels filtres d'acetat de cel.lulosa.

A les taules 3.1-3.8 hom dóna els valors de les activitats certificats, activitat corregida amb el factor de decaïment i l'obtinguda experimentalment, els valors del percentatge d'eficiència experimental obtinguts a partir de l'activitat experimental i de l'activitat corregida, els valors del percentatge de l'eficiència calculada obtinguts a partir de l'ajust amb la funció de calibratge en eficiències descrita a l'apartat 2.3.2 d'aquesta memòria, així com els temps de mesura i els d'espera calculat a partir de la data de preparació del patró emprat per a cada geometria.

Taula 3.1. Activitat certificada, corregida i experimental, factor de decaïment, % eficiència experimental i % d'eficiència calculada pel filtre No. 1 d'acetat de cel·lulosa sense solució àcida (HCl 4M).

ENERGIA	ACTIVITAT CERTIFICADA (MeV)	FACTOR DECAÏMENT (dps/g)	ACTIVITAT CORREGIDA (dps/g)	ÀREA NETA (comptes)	ACTIVITAT EXPERIM. (dps/g)	% EFICIÈNCIA EXPERIM. CALCULADA
0.088	188.7152	0.8909	168.1264	182446	11.2237	6.6758
0.122	172.5908	0.8217	141.8179	189403	11.6517	8.2160
0.166	203.3466	0.6783	137.9300	158008	9.7203	7.0473
0.279	602.8734	0.3181	191.7740	134919	8.2999	4.3280
0.392	604.0678	0.6289	379.8982	174210	10.7171	2.8210
0.514	1170.8106	0.4388	513.7517	185550	11.4147	2.2218
0.662	766.2076	0.9950	762.3766	198684	12.2226	1.6032
0.898	1842.6606	0.6061	1116.8366	217516	13.3812	1.1981
1.173	993.4222	0.9726	966.2024	140473	8.6416	0.8944
1.333	994.6366	0.9726	967.3836	123379	7.5900	0.7846
1.836	1964.4894	0.6061	1190.6770	112864	6.9432	0.5831

TEMPS DE MESURA: 16255 s.

TEMPS D'ESPERA: 77 dies respecte l'1 d'octubre de 1988, data de preparació del patró.

Taula 3.2. Activitat certificada, corregida i experimental, factor de decaïment, % eficiència experimental i % d'eficiència calculada pel filtre No. 2 d'acetat de cel·lulosa amb solució àcida (HCl 4M).

ENERGIA	ACTIVITAT CERTIFICADA (MeV)	FACTOR DECAÏMENT (dps/g)	ACTIVITAT CORREGIDA (dps/g)	ÀREA NETA (comptes)	ACTIVITAT EXPERIM. (dps/g)	% EFICIÈNCIA EXPERIM. CALCULADA
0.088	188.7152	0.8504	160.4834	41498	7.7174	4.8088
0.122	172.5908	0.7592	131.0309	41463	7.7109	5.8848
0.166	203.3466	0.5802	117.9817	34089	6.3395	5.3733
0.279	602.8734	0.2006	120.9364	22047	4.1001	3.3903
0.392	604.0678	0.5218	315.2026	39396	7.3265	2.3244
0.514	1170.8106	0.3150	368.8053	34898	6.4900	1.7597
0.662	766.2076	0.9931	760.9208	54519	10.1389	1.3325
0.898	1842.6606	0.4955	913.0383	47804	8.8901	0.9737
1.173	993.4222	0.9618	955.4735	37595	6.9916	0.7317
1.333	994.6366	0.9618	956.6415	32498	6.0437	0.6318
1.836	1964.4894	0.4955	913.0383	25216	4.6894	0.5136

TEMPS DE MESURA: 5377 s.

TEMPS D'ESPERA: 108 dies respecte l'1 d'octubre de 1988, data de preparació del patró.

Taula 3.3. Activitat certificada, corregida i experimental, factor de decaïment, % eficiència experimental i % d'eficiència calculada pel filtre No. 3 d'acetat de cel·lulosa sense solució àcida (HCl 4M).

ENERGIA	ACTIVITAT CERTIFICADA (MeV)	FACTOR DECAÏMENT (dps/g)	ACTIVITAT CORREGIDA (dps/g)	ÀREA NETA (comptes)	ACTIVITAT EXPERIM. (dps/g)	% EFICIÈNCIA EXPERIM. CALCULADA
0.088	139.1664	0.8869	123.4267	122748	8.6723	7.0263
0.122	127.2756	0.8154	103.7805	126016	8.9032	8.5789
0.166	149.9562	0.6681	100.1857	111043	7.8453	7.8308
0.279	444.5838	0.3042	135.2423	93368	6.5966	4.8776
0.392	445.4646	0.6177	275.1635	134932	9.5331	3.4645
0.514	863.4042	0.4250	366.9468	131917	9.3201	2.5399
0.662	565.0330	0.9950	562.2080	153262	10.8282	1.9260
0.898	1358.8542	0.5944	807.7029	151767	10.7226	1.3275
1.173	732.6054	0.9716	711.7994	100042	7.0681	0.9930
1.333	733.4862	0.9716	712.6552	87901	6.2103	0.8714
1.836	1448.6958	0.5944	861.1048	78726	5.5621	0.6459

TEMPS DE MESURA: 14154 s.

TEMPS D'ESPERA: 80 dies respecte l'1 d'octubre de 1988, data de preparació del patró.

Taula 3.4. Activitat certificada, corregida i experimental, factor de decaïment, % eficiència experimental i % eficiència calculada pel filtre No. 4 d'acetat de cel·lulosa amb solució àcida (HCl 4M).

ENERGIA	ACTIVITAT CERTIFICADA (MeV)	FACTOR DECAÏMENT (dps/g)	ACTIVITAT CORREGIDA (dps/g)	ÀREA NETA (comptes)	ACTIVITAT EXPERIM. (dps/g)	% EFICIÈNCIA EXPERIM. CALCULADA
0.088	139.1664	0.8491	118.1662	39750	5.7010	4.8246
0.122	127.2756	0.7572	96.3731	40374	5.7905	6.0084
0.166	149.9562	0.5773	86.5697	32776	4.7008	5.4301
0.279	444.5838	0.1976	87.8498	21563	3.0926	3.5203
0.392	445.4646	0.5187	231.0625	38725	5.5540	2.4037
0.514	863.4042	0.3116	269.0367	32976	4.7294	1.7579
0.662	565.0330	0.9931	561.1345	54415	7.8042	1.3908
0.898	1358.8542	0.4923	668.9639	45038	6.4594	0.9656
1.173	732.6054	0.9615	704.4001	36043	5.1693	0.7339
1.333	733.4862	0.9615	705.2470	31543	4.5239	0.6415
1.836	1448.6958	0.4923	713.1929	23577	3.3814	0.4741

TEMPS DE MESURA: 6973 s.

TEMPS D'ESPERA: 109 dies respecte l'1 d'octubre de 1988, data de preparació del patró.

Taula 3.5. Activitat certificada, corregida i experimental, factor de decaïment, % eficiència experimental i % d'eficiència calculada pel filtre No. 5 de fibra de vidre sense solució àcida (HCl 4M).

ENERGIA	ACTIVITAT CERTIFICADA (MeV)	FACTOR DECAÏMENT (dps/g)	ACTIVITAT CORREGIDA (dps/g)	ÀREA NETA (comptes)	ACTIVITAT EXPERIM. (dps/g)	% EFICIÈNCIA EXPERIM. CALCULADA
0.088	153.2600	0.8856	135.7271	62321	6.7459	4.9702
0.122	140.1650	0.8133	113.9962	62919	6.8106	5.9744
0.166	165.1425	0.6648	109.7867	54504	5.8997	5.3652
0.279	489.6075	0.2997	145.5366	28581	3.0937	2.1339
0.392	490.5775	0.6140	301.2146	59380	6.4275	2.1257
0.514	950.8425	0.4204	339.7342	62274	6.7408	1.9841
0.662	622.2550	0.9950	619.1437	67834	7.3426	1.1859
0.898	1496.4675	0.5906	883.8137	75589	8.1820	0.9258
1.173	806.7975	0.9712	783.5617	49648	5.3741	0.6859
1.333	807.7675	0.9712	784.5038	43706	4.7309	0.6030
1.836	1595.4075	0.5906	942.2477	38984	4.2198	0.4478

TEMPS DE MESURA: 9238 s.

TEMPS D'ESPERA: 81 dies respecte l'1 d'octubre de 1988, data de preparació del patró.

Taula 3.6. Activitat certificada, corregida i experimental, factor de decaïment, % eficiència experimental i % d'eficiència calculada pel filtre No. 6 de fibra de vidre amb solució àcida (HCl 4M).

ENERGIA	ACTIVITAT CERTIFICADA (MeV)	FACTOR DECAÏMENT (dps/g)	ACTIVITAT CORREGIDA (dps/g)	ÀREA NETA (comptes)	ACTIVITAT EXPERIM. (dps/g)	% EFICIÈNCIA EXPERIM. CALCULADA
0.088	153.2600	0.8504	130.3323	96635	5.9273	4.5478
0.122	140.1650	0.7592	106.4133	103459	6.3459	5.9634
0.166	165.1425	0.5802	95.8157	84535	5.1851	5.4115
0.279	489.6075	0.2006	98.2153	31407	1.8264	2.3339
0.392	490.5775	0.5218	255.9833	86865	5.3280	2.0814
0.514	950.8425	0.3150	299.5154	83047	5.0938	1.7007
0.662	622.2550	0.9931	617.9614	115242	7.0686	1.1439
0.898	1496.4675	0.4955	741.4996	116422	7.1410	0.9630
1.173	806.7975	0.9618	775.9778	92716	5.6869	0.7329
1.333	807.7675	0.9618	776.9108	79727	4.8902	0.6294
1.836	1595.4075	0.4955	790.5244	61377	3.7647	0.4762

TEMPS DE MESURA: 16303 s.

TEMPS D'ESPERA: 108 dies respecte l'1 d'octubre de 1988, data de preparació del patró.

Taula 3.7. Activitat certificada, corregida i experimental, factor de decaïment, % eficiència experimental i % d'eficiència calculada pel filtre No. 7 de fibra de vidre sense solució àcida (HCl 4M).

ENERGIA	ACTIVITAT CERTIFICADA (MeV)	FACTOR DECAÏMENT (dps/g)	ACTIVITAT CORREGIDA (dps/g)	ÀREA NETA (comptes)	ACTIVITAT EXPERIM. (dps/g)	% EFICIÈNCIA EXPERIM. CALCULADA
0.088	151.0480	0.8856	133.7681	29077	6.8444	5.1166
0.122	138.1420	0.8133	112.3509	30966	7.2890	6.4770
0.166	162.7590	0.6648	108.2022	26025	6.1260	5.6616
0.279	482.5410	0.2997	144.6175	20400	4.8019	3.3204
0.392	483.497.	0.6140	296.8672	26233	6.1749	2.0800
0.514	937.1190	0.4204	393.9648	27455	6.4626	1.6404
0.662	613.2740	0.9950	610.2076	29080	6.8451	1.1218
0.898	1474.8690	0.5906	871.0576	35897	8.4497	0.9701
1.173	795.1530	0.9712	772.2526	23895	5.6246	0.7283
1.333	796.1090	0.9712	773.1811	21057	4.9566	0.6411
1.836	1572.3810	0.5906	928.6482	18742	4.4116	0.4751

TEMPS DE MESURA: 4248 s.

TEMPS D'ESPERA: 81 dies respecte l'1 d'octubre de 1988, data de preparació del patró.

Taula 3.8. Activitat certificada, corregida i experimental, factor de decaïment, % eficiència experimental i % d'eficiència calculada pel filtre No. 8 de fibra de vidre amb solució àcida (HCl 4M).

ENERGIA	ACTIVITAT CERTIFICADA (MeV)	FACTOR DECAÏMENT (dps/g)	ACTIVITAT CORREGIDA (dps/g)	ÀREA NETA (comptes)	ACTIVITAT EXPERIM. (dps/g)	% EFICIÈNCIA EXPERIM. CALCULADA
0.088	151.0480	0.8491	128.2549	47384	5.2763	4.1139
0.122	138.1420	0.7572	104.6011	50390	5.6110	5.3642
0.166	162.7590	0.5773	93.9608	40780	4.5409	4.8328
0.279	482.5410	0.1976	95.3501	24707	2.7512	2.8854
0.392	483.497.	0.5187	250.7899	43785	4.8756	1.9441
0.514	937.1190	0.3116	292.0063	41357	4.6052	1.5771
0.662	613.2740	0.9931	609.0424	61564	6.8553	1.2556
0.898	1474.8690	0.4923	726.0780	58640	6.5297	0.8993
1.173	795.1530	0.9615	764.5396	46209	5.1455	0.6730
1.333	796.1090	0.9615	765.4588	39887	4.4415	0.5802
1.836	1572.3810	0.4923	774.0832	30440	3.3896	0.4379

TEMPS DE MESURA: 8981 s.

TEMPS D'ESPERA: 109 dies respecte l'1 d'octubre de 1988, data de preparació del patró.

A les figures 3.3 i 3.4 hom dona les corbes d'eficiència obtingudes per a cada geometria a l'emprar els filtres d'acetat de cel.lulosa i els filtres de fibra de vidre respectivament.

Pel que fa als filtres d'acetat de cel.lulosa hom observa una millor eficiència al emprar els filtres sense solució, mentre que en el cas dels filtres de fibra de vidre els valors d'eficiència són més semblants. Això ens va portar a realitzar les mesures dels filtres que contenen els aerosols atmosfèrics sense solució ja que la manipulació de la geometria sense solució és molt més fàcil.

A la taula 3.9 hom dona els paràmetres del calibratge en eficiències obtinguts en cada cas per a la funció:

$$\ln(e_{\text{absoluta isotòpic}}) = a_1 - (a_2 + a_3 \exp(-a_4 E)) \exp(-a_5 E) \ln(E)$$

descrita en l'apartat 2.3.3.1.

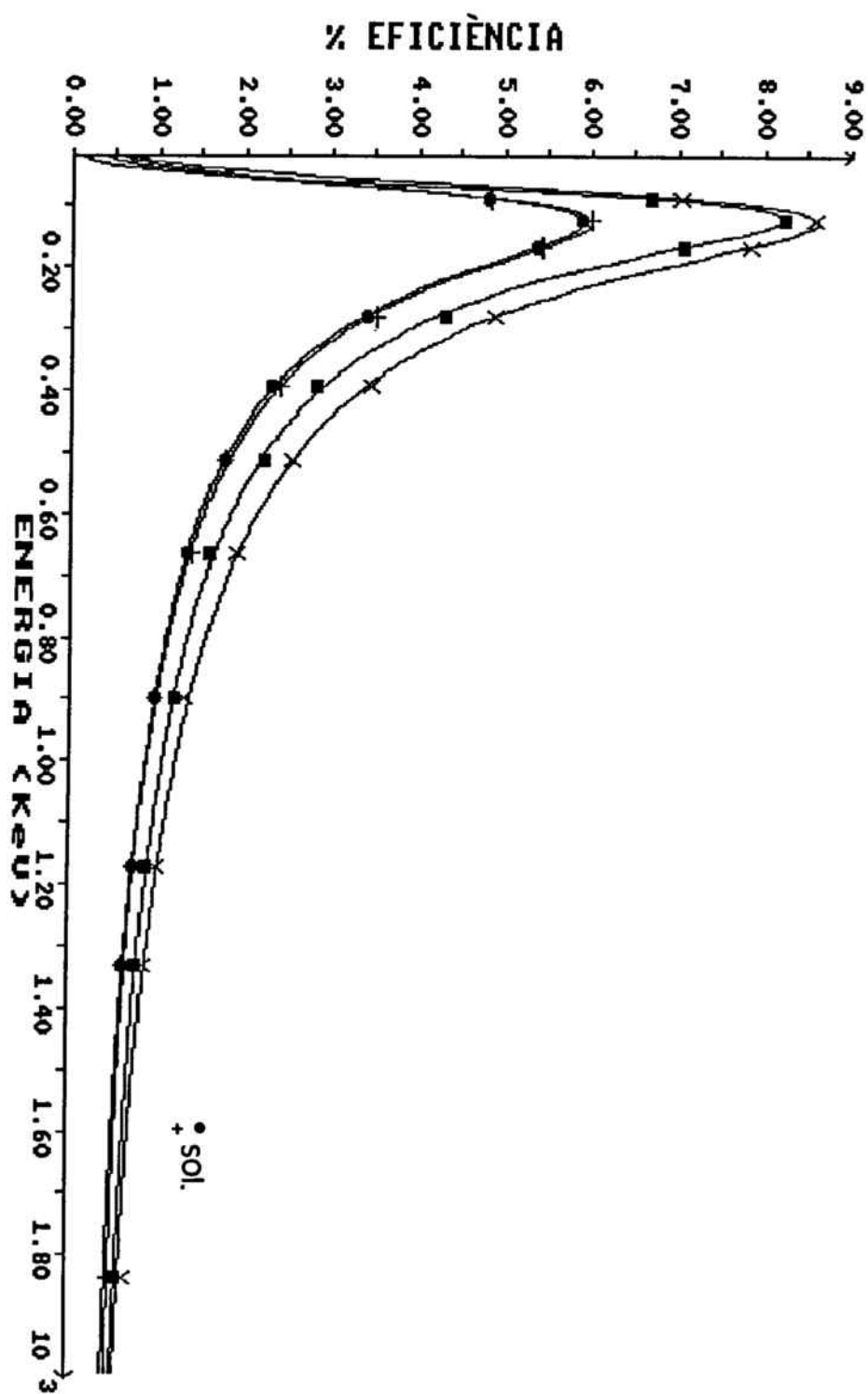


Figura 3.3. Corbes d'eficiència pels filtres d'acetat de cel·lulosa amb solució i sense solució.

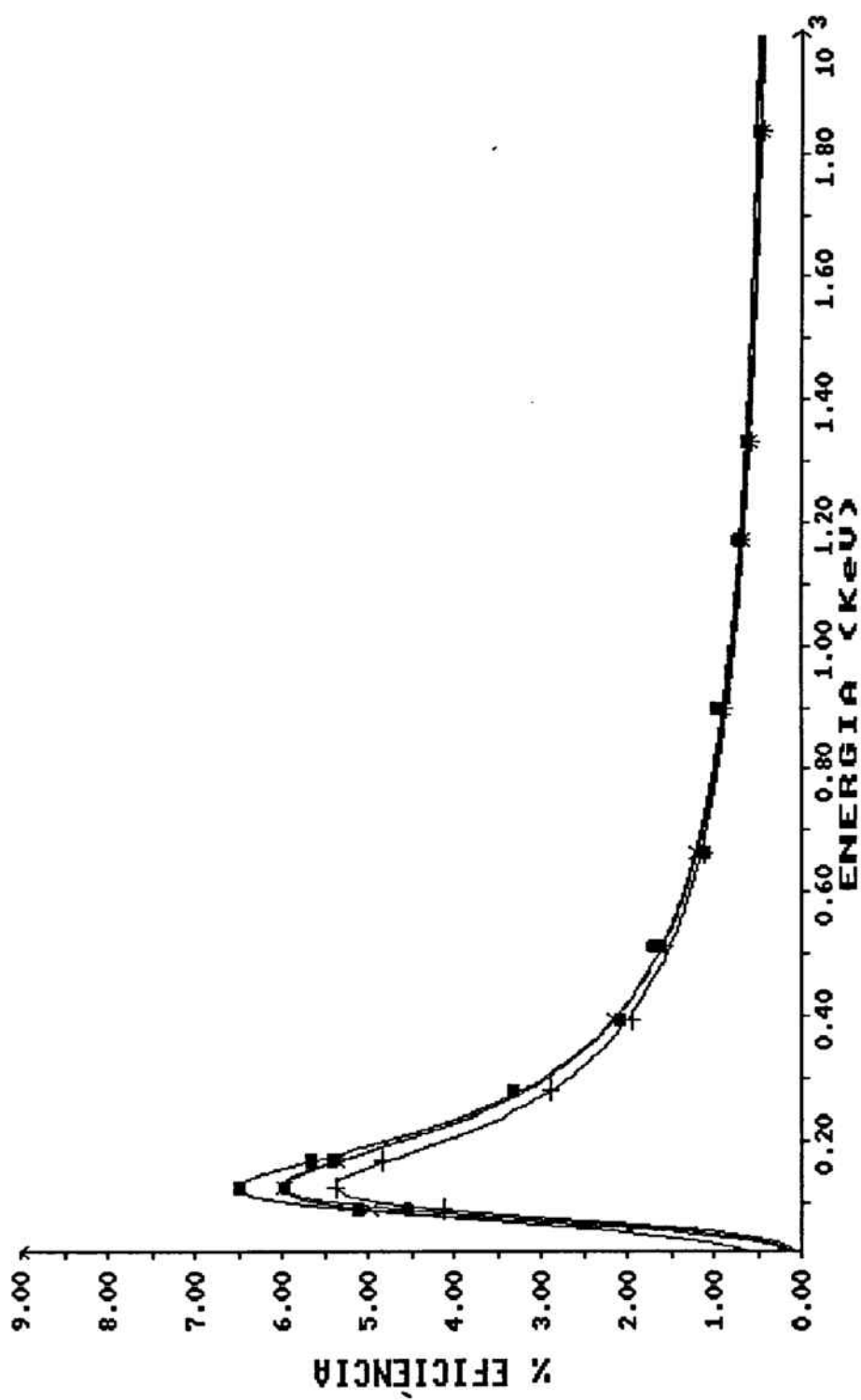


Figura 3.4. Corbes d'eficiència pels filtres de fibra de vidre amb solució i sense solució.

Taula 3.9. Valors dels paràmetres de la funció del calibratge en eficiències obtinguts per a cadascun dels filtres emprats.

Nº FILTRE	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5
1	7.36378E+00	1.10106E+00	4.81784E+00	3.73365E-02	4.39744E-06
2	7.45393E+00	1.11091E+00	2.858338+00	2.99815E-02	1.10995E-05
3	7.54269E+00	1.054007+00	2.99448E+00	3.10914E-02	-8.9079E-06
4	7.12639E+00	1.04355E+00	3.16983E+00	3.16507E-02	-6.2207E-06
5	8.15458E+00	1.25166E+00	2.95215E+00	2.97474E-02	2.96972E-05
6	8.10275E+00	1.24481E+00	4.19882E+00	3.29464E-02	4.45137E-05
7	8.45861E+00	1.30695E+00	4.21610E+00	3.34090E-02	3.98601E-05
8	7.46532E+00	1.14374E+00	4.67146E+00	3.52242E-02	2.24377E-05

FUNCIÓ DEL CALIBRATGE EN ENERGIES:

$$\ln(e_{\text{absoluta}}(E)) = a_1 - (a_2 + a_3 \exp(-a_4 E)) \exp(-a_5 E) \ln(E)$$

on: ef = eficiència

E = energia

a_1, a_2, a_3, a_4, a_5 = paràmetres a ajustar.

3.4 MÈTODE ANALÍTIC.

Totes les mesures van fer-se per espectrometria gamma d'alta resolució emprant el detector coaxial de Ge(Li) marca Ortec, model GLI-10200, i la cadena de detecció descrita en l'apartat 2.1 d'aquest estudi.

Per a les anàlisis qualitativa i quantitativa dels espectres obtinguts en les mesures, es va procedir de la forma indicada en l'apartat 2.4.

Per a aquest estudi dels filtres dels aerosols atmosfèrics hom ha emprat la geometria cilíndrica de 50 cm³ i de 3 cm d'alçada sense addició de solució àcida al filtre, tal com s'ha indicat en l'apartat anterior.

A la taula 3.10 hom dóna els valors dels límits de detecció per cada radionúclid.

Taula 3.10. Interval dels límits de detecció pels diferents radionúclids, (mBq/m³).

Radionúclid	Valor mínim	Valor màxim
¹³⁴ Cs	0.10	0.57
¹³⁷ Cs	0.03	0.25
¹³¹ I	0.02	0.04

3.5 RESULTATS I DISCUSSIÓ.

A la taula 3.11 hom dóna el volum de mostra i el temps de mesura per a cadascun dels filtres d'aerosols atmosfèrics analitzats, així com el temps d'espera.

Taula 3.11. Volum de mostra, temps de mesura i temps d'espera de cadascun dels filtres d'aerosols atmosfèrics analitzats.

Data	Volum de mostra (m ³)	Temps de mesura (segons)	Temps d'espera (dies)
Avinguda Diagonal			
06-05-86	2011	35860	1
08-05-86	969	59350	2
15-05-86	958	18000	1
11-06-86	2446	14150	1
07-10-86	753	57234	6
08-10-86	1800	48370	5
14-10-86	998	63785	1
19-02-87	978	68156	1
27-05-87	968	72845	2
28-05-87	998	69789	3
02-06-87	983	22241	1
11-06-87	986	52144	2
12-06-87	955	48708	4
16-06-87	1898	24362	3
Plaça Molina			
23-04-86	656	87811	1105
24-04-86	1380	80512	1104
29-04-86	926	83731	1099
30-04-86	1288	103977	1098

Continuació Taula 3.11.

Data	Volum de mostra (m ³)	Temps de mesura (segons)	Temps d'espera (dies)
02-05-86	1409	69946	1096
08-05-86	1522	81065	1090
09-05-86	1034	88517	1089
10-05-86	1000	83452	1088
12-05-86	1401	81924	1086
07-07-86	530	97128	1081
08-07-86	568	90788	1083
Santa Coloma de Gramanet			
30-04-86	679	79547	1128
05-05-86	679	85927	1129
06-05-86	661	91999	1128
07-05-86	887	88421	1128
08-05-86	779	82013	1128
09-05-86	679	84469	1128
12-05-86	513	86925	1136
Montcada i Reixach			
30-04-86	540	83863	1141
05-05-86	420	82993	1135
06-05-86	415	77419	1135
07-05-86	887	88421	1136

A la taula 3.12 hom dóna els resultats d'activitat corresponents al ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs i ¹³¹I dels aerosols atmosfèrics captats a l'Avinguda Diagonal emprant filtres d'acetat de cel.lulosa. Tot i que els tipus de filtres (fibra de vidre i membrana d'acetat de cel.lulosa) emprats no són els adequats per a la presa de mostra de ¹³¹I, ja que la major part del ¹³¹I provinent de l'accident de la Central Nuclear de Txernòbil es

trobava en forma gasosa, hom va observar l'arribada de certes formes particulades d'aquest radionúclid. Estudis realitzats per altres autors (15,16,17) mostren que l'activitat de ^{131}I en forma gasosa, procedent de l'accident de Txernòbil, era aproximadament 2 o 3 vegades més gran que l'activitat del ^{131}I en forma particulada.

Taula 3.12. Valors d'activitat de ^{134}Cs , ^{137}Cs i ^{131}I en els filtres d'aerosols atmosfèrics captats a l'Avinguda Diagonal. ($\text{mBq/m}^3 \pm 2\sigma$).

Data	^{134}Cs	^{137}Cs	^{131}I
06-05-86	0.14±0.04	0.18±0.05	1.24±0.06
08-05-86	0.27±0.05	0.76±0.11	1.59±0.08
15-05-86	0.38±0.09	1.06±0.16	1.60±0.18
11-06-86	0.08±0.04	0.26±0.07	0.09±0.03
07-07-86	<0.10	0.10±0.05	<0.16
08-07-86	<0.05	<0.06	<0.06
14-07-86	<0.04	<0.06	<0.81
19-02-87	<0.04	<0.01	0.11±0.03
27-05-87	<0.01	<0.02	<0.02
28-05-87	<0.01	<0.01	0.40±0.10
02-06-87	<0.01	<0.10	<0.10
11-06-87	<0.01	<0.10	<0.10
12-06-87	<0.01	<0.03	<0.04
16-06-87	<0.01	<0.01	<0.07

A la taula 3.13 hom dóna els resultats d'activitat corresponents al ^{134}Cs i ^{137}Cs dels aerosols atmosfèrics captats a Plaça Molina, Santa Coloma de Gramanet i Montcada i Reixach emprant filtres de fibra de vidre. En aquest cas hom no dóna els valors d'activitat corresponents al ^{131}I degut a que aquest radionúclid té un període de semidesintegració de 8 dies respectivament i el temps d'espera en la mesura era molt gran (taula 3.11) degut a la impossibilitat per una banda de disposar d'aquests filtres immediatament i per altre al fet que el gran allau de mostres que a través del Servei de Coordinació d'Activitats Radioactives de la Generalitat de Catalunya arribaren al laboratori immediatament després de l'accident de la C.N de Txernòbil va fer impossible, donades les limitacions instrumentals, controlar de forma més continuada l'activitat dels aerosols atmosfèrics durant aquests dies.

Els resultats obtinguts, els quals es donen a les taules 3.12 i 3.13 estan d'acord amb els publicats pel CIEMAT-PRYMA (1) en aquesta zona del litoral mediterrani.

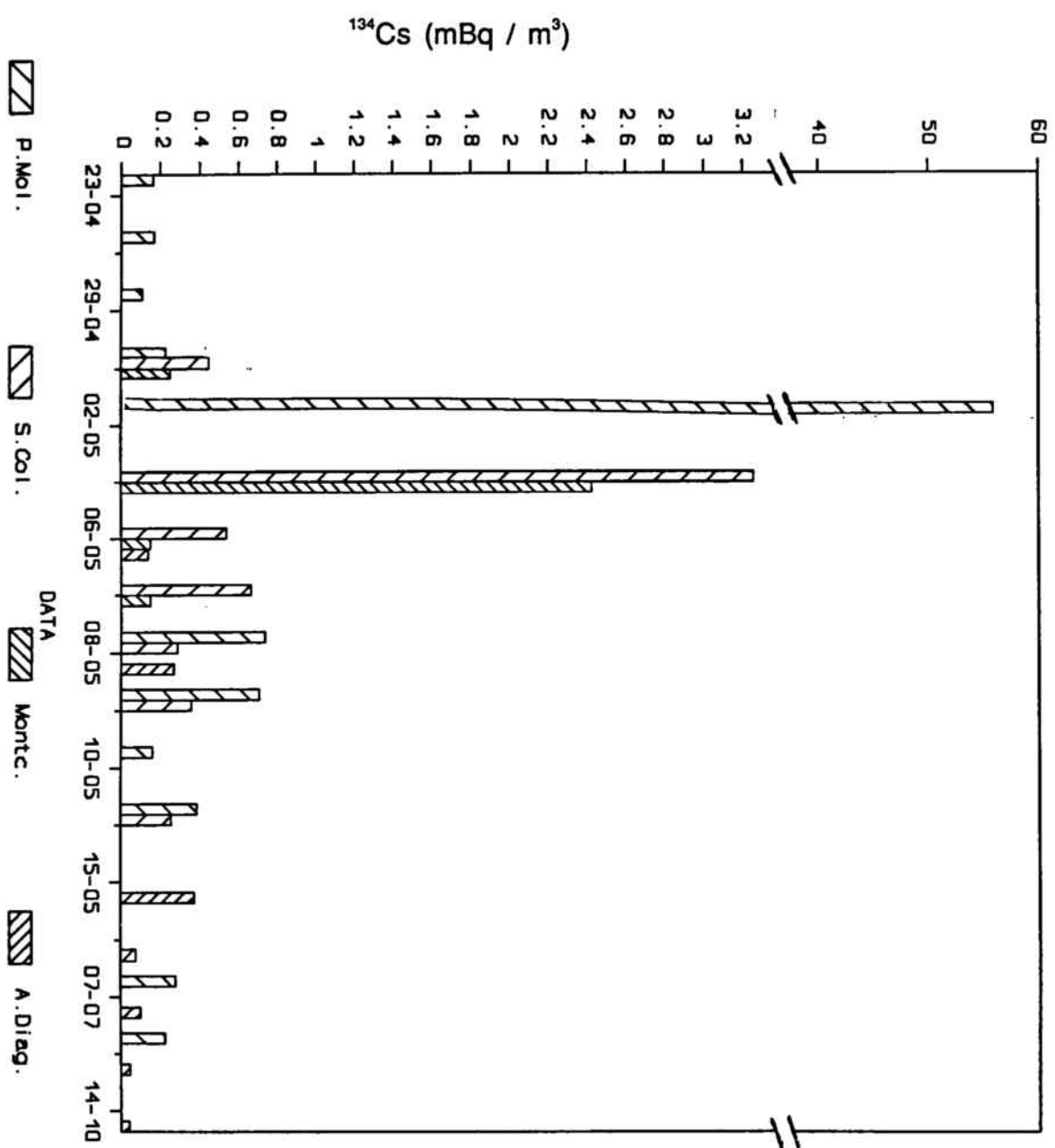
Taula 3.13. Valors d'activitat de ^{134}Cs i ^{137}Cs en els filtres d'aerosols atmosfèrics captats a Plaça Molina, Santa Coloma de Gramanet i Montcada i Reixach, ($\text{mBq/m}^3 \pm 2\sigma$).

Data	^{134}Cs	^{137}Cs
Plaça Molina		
23-04-86	<0.16	<0.15
24-04-86	<0.17	<0.03
29-04-86	<0.11	<0.10
30-04-86	0.23 ± 0.14	0.21 ± 0.10
02-05-86	55.9 ± 0.61	101.0 ± 0.61
08-05-86	0.74 ± 0.13	1.10 ± 0.07
09-05-86	0.71 ± 0.17	0.98 ± 0.12
10-05-86	0.16 ± 0.14	0.26 ± 0.09
12-05-86	0.39 ± 0.15	0.60 ± 0.11
07-07-86	<0.28	<0.11
08-07-86	<0.23	<0.09
Santa Coloma de Gramanet		
30-04-86	<0.45	<0.11
05-05-86	3.26 ± 0.66	5.41 ± 0.35
06-05-86	<0.54	<0.25
07-05-86	<0.67	<0.13
08-05-86	<0.29	0.78 ± 0.14
09-05-86	0.36 ± 0.24	1.20 ± 0.16
12-05-86	<0.26	0.46 ± 0.28
Montcada i Reixach		
30-04-86	<0.25	<0.10
05-05-86	2.43 ± 0.31	5.36 ± 0.21
06-05-86	<0.15	<0.10
07-05-86	<0.15	<0.11

A les figures 3.5 i 3.6 hom mostra els valors d'activitat del ^{134}Cs i ^{137}Cs en les mostres estudiades en funció del dia de presa de mostra. Hom pot veure un clar increment de l'activitat a partir del dia 30 d'abril de 1986 observant-se un pic d'activitat durant la primera semana del mes de maig i un altre pic, menys important, a mitjants del mes de maig. Aquest increment es més clar en aquells punts en els quals hom disposa de més dades en aquest període. Aquests resultats estan d'acord amb els estudis realitzats per altres autors (18,19) els quals apliquen models Lagrangians per tal d'estudiar la trajectòria del núvol radioactiu procedent de Txernòbil, tal com es pot observar en la figura 3.7.

A la taula 3.14 hom dona els resultats de les activitats de ^{134}Cs , ^{137}Cs i ^{131}I mesurats en diferents punts de l'hemisferi nord durant el mes de maig de 1986.

Figura 3.5. Valors d'activitat del ^{134}Cs en els diferents punts de presa de mostra.



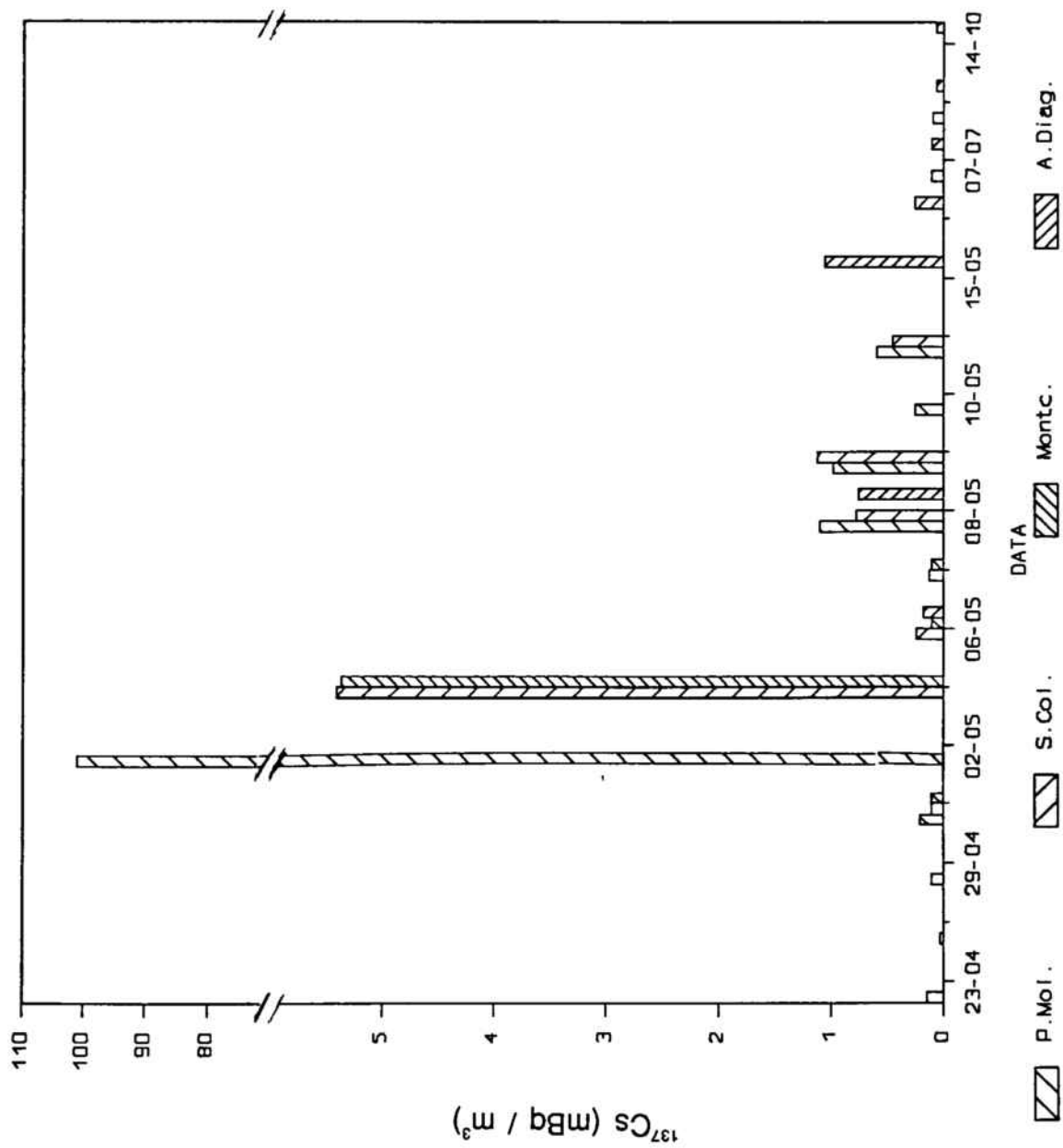
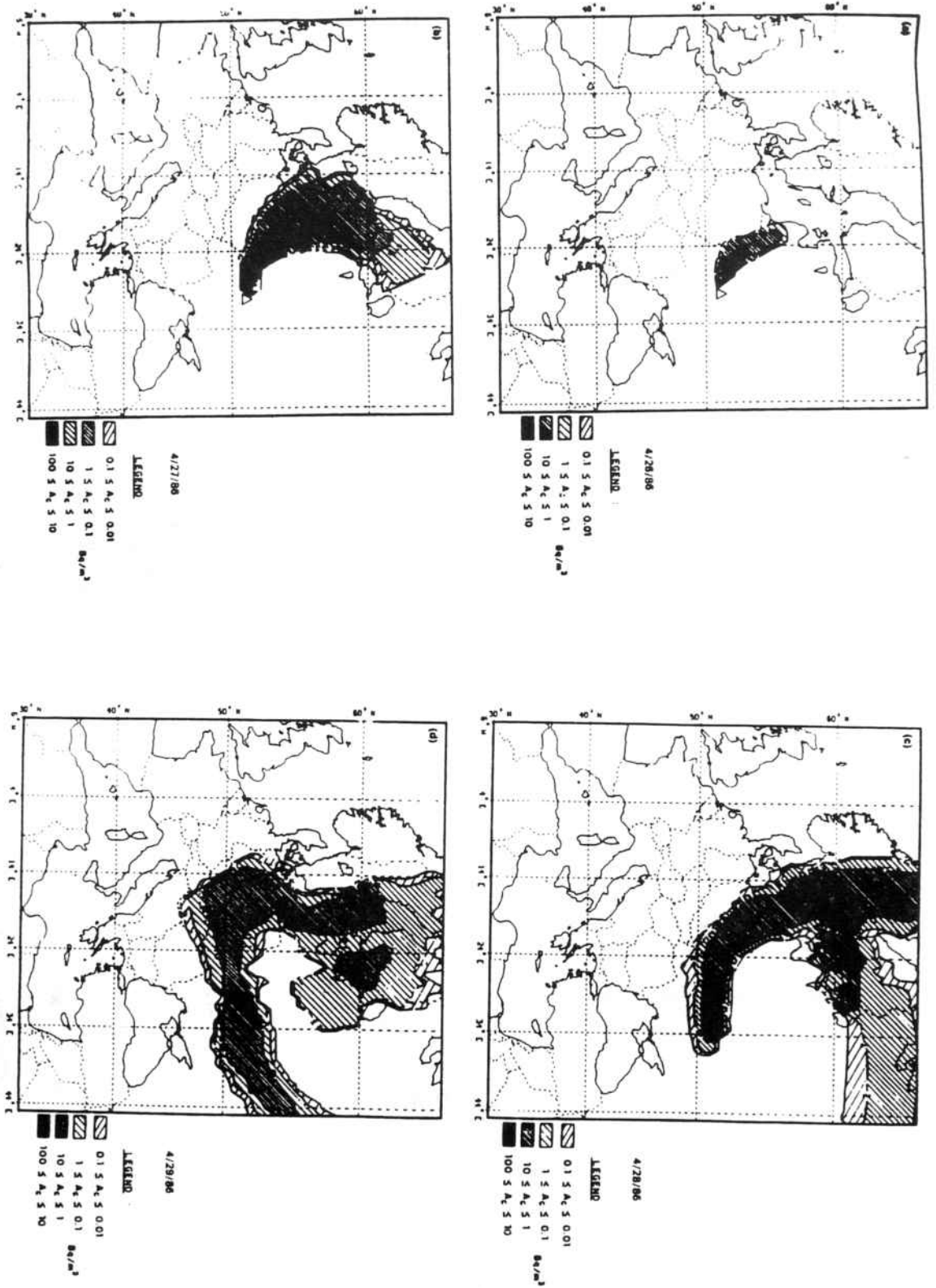


Figura 3.6. Valors d'activitat del ^{137}Cs en els diferents punts de presa de mostra.

Figura 3.7. Trajectòria del núvol radioactiu procedent de Txernòbil.



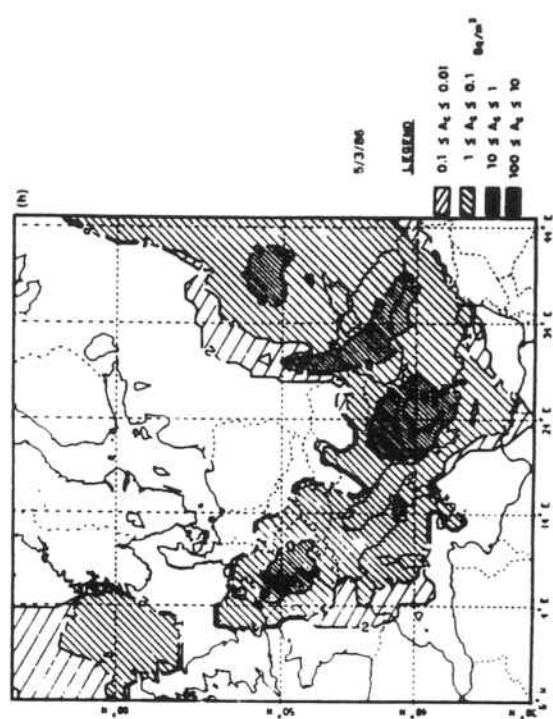
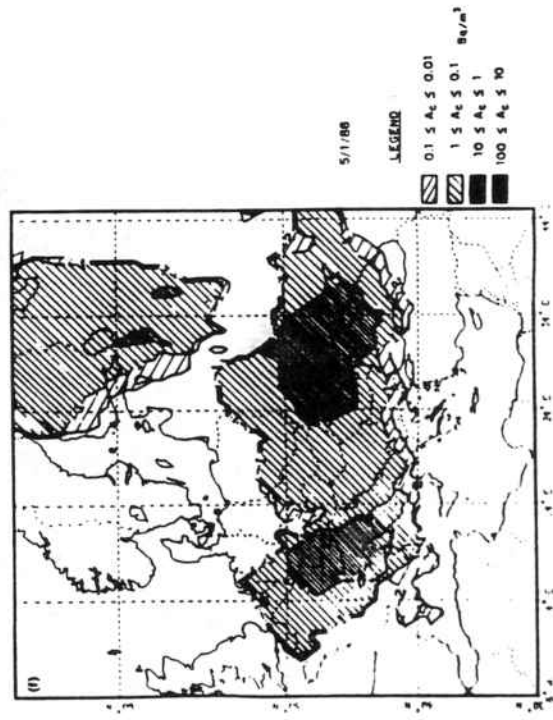
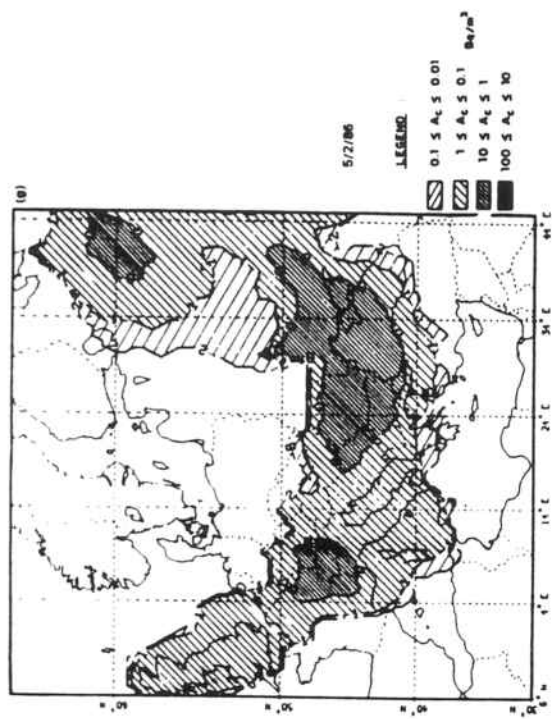
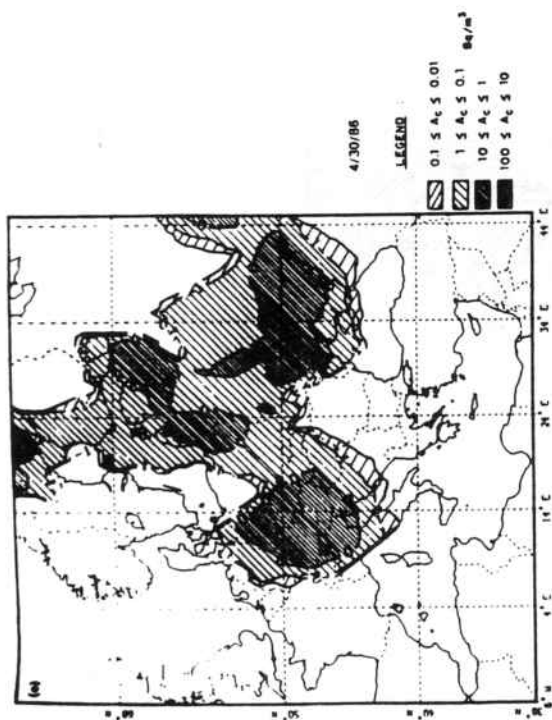


Figura 3.7. Trajectòria del núvol radioactiu procedent de Txernòbil. Continuació.

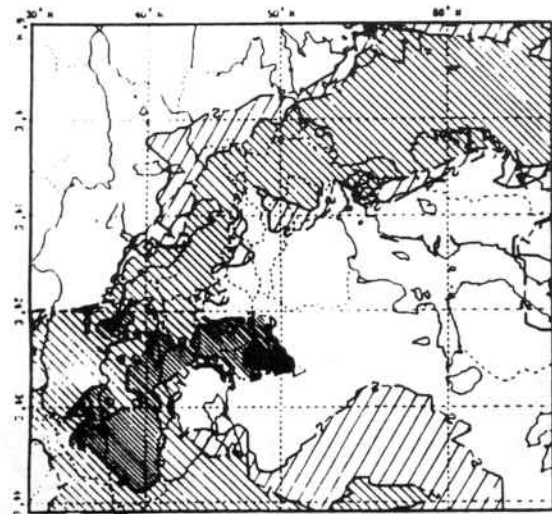
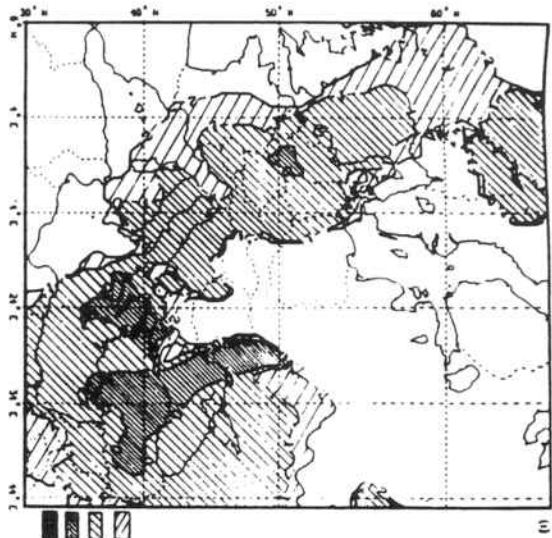


Figura 3.7. Trajectòria del núvol radioactiu procedent de Txernòbil. Continuació.

Taula 3.14. Valors d'activitat de ^{137}Cs , ^{134}Cs i ^{131}I de diferents punts de l'hemisferi nord mesurats al maig de 1986, mBq/m³.

LLOC	DATA	^{137}Cs	^{134}Cs	^{131}I	REF.
Canada	10-14/5	4-8	--	--	(20)
Pensilvania	09-10/5	63	33	28	(15)
Hannover		100-200	--	1000-1200	(21)
Mol	02-5/5	3600	1900	7800	(22)
Fleurus	2/5	3330	2030	6840	(23)
Nice		734	320	759	(24)
Riso	03-7/5	400	--	600	(25)
Praga	5/5	>300	--	--	(26)
Barcelona	28/4-5/5	18	8	22	(27)
Barcelona	30/4-5/5	0.18-101	0.08-55.9	0.09-1.59	(28)
U.S	09-10/5	2-8	--	10-20	(29)
U.K	--	1200-6900	--	--	(30)
Catalunya	--	--	--	250	(31)

3.6 CONCLUSIONS.

En base a les mesures realitzades hom pot concloure que l'impacte radiològic de l'accident de la Central Nuclear de Txernòbil a l'àrea metropolitana de Barcelona va ésser veritablement negligible comparat amb la resta d'Europa.

Tot i que les mesures realitzades varen ésser poques, hom observa l'aparició de dos pics d'activitat de radiocesi durant el mes de maig al igual que a la resta de països europeus.

L'interval en la relació $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ en les mesures realitzades és 0.30-1.10, amb un valor mig igual a 0.57 ± 0.23 (\pm una vegada la desviació estàndard). Aquests intervals estan d'acord amb els trobats per altres autors (29-32).

3.7 BIBLIOGRAFIA.

(1) CIEMAT/PRYMA/01/86. Informe sobre la actuación del CIEMAT-JEN en el seguimiento del impacto radiológico producido en España como consecuencia del accidente de la Central Nuclear de Tchernobyl. Ministerio de Industria y Energia. Centro de Investigación Energética Medioambiental y Tecnológica. J.E.N. Julio 1986.

(2) Linder, P. "Air filters for use at nuclear facilities." Technical Reports Series No. 122. International Atomic Energy Agency (IAEA), pp. 4, Viena 1970.

(3) Paul, J., Liroy, Ph.D. "Air Sampling Instruments for Evaluation of Atmospheric Contaminants". 6th edition, 1983, American Conference of Governmental Industrial Hygienists. Cincinnati, Ohio. ISBN: 0-936712-43-0.

(4) Stern, A.C., "Air Pollution", Vol III, Measuring, Monitoring and Surveillance of Air Pollution., pp.419, New York, Academic Press, ISBN 0-12-666603-2 (1976).

(5) Lockhart,L.B.,Jr.; Patterson,R.L.,Jr. and Anderson,W.L.; "Characteristics of Air Filter Used for Monitoring Airborne Radioactivity." NRL Report No. 6054. U.S. Naval Researsch Laboratory,

Washington,DC, March 20, (1964).

(6) Stafford,R.G. and Ettinger,H.J.; "Filter Efficiency as a Function of Particle Size and Velocity." *Atm. Environ.*, **6**, 353-362, (1972).

(7) Liu,B.Y.H., Pui,D.Y.H and Rubow,K.L.; "Characteristics of Air Sampling Media." *Proceedings: International Symposium on Aerosols in the Mining and Industrial Work Environment*, Minneapolis, MN, (1981).

(8) Skocypec,W.J.; "The Efficiency of Membrane Filter for the Collection of Condensation Nuclei."; M.S.Thesis. Univ. of North Carolina, School of Public Health, Chapel Hill, NC, (1974).

(9) John,W. and Reischl,G.; "Measurements of the Filtration Efficiencies of Selected Filters Types." *Atmos.Environ.*, **12**, 2015-2019 (1978).

(10) Lundgren,D.A. and Gunderson,T.C.; "Efficiency and Loading Characteristics of EPA's High-Temperature Quartz Fiber Filter Media."; *Amer.Ind.Hyg.Assoc.J.*, **36**, 806-872, (1975).

(11) Davies,C.N.; "The Clogging of Fibrous Aerosol Filters." *Aerosol Sci.*,**1**, 35-39, (1970).

(12) Biles,B. and Ellison,J.McK.; "The Efficiency of Cellulose Fiber Filters with Respect to Lead and Black Smoke in Urban Aerosl."; *Atmos. Environ.*, **9**, 1030-1032,(1975).

(13) Lossner,V.; "Die Bestimmung der Eindringtiefe von Aerosolen in Filtern." *Staub*, **24**, 217-221, (1964).

(14) G.Rauret, R.Rubio and M.Llauradó. "Application of the combustion method in a closed flask to the lead determination in atmospheric aerosols".

- *Inter.Jour.of Envi.Anal.Chem.*, **23**, 59-68 (1985).

- "Air and Water Analysis: New Techniques and Data". Edited by R.W. Frei and J. Albaigés. Volumen Nine, Current Topics in Environmental and toxicological Chemistry. Gordon and Breach Science Publishers. ISBN 2-88124-183-2, ISSN 0275-2581,(1986).

(15) Schell,W.R., Rosen, J., Strom, D. and Yusko, J. "Fallout from Chernobyl in Western Pennsylvania". Annual Health Conference Pennsylvania Public Health Association, "Working together for Public Health". Sheraton Penn State, State College, Pennsylvania. October 9-10, (1986).

(16) Devell,L., Tovedal, H., Bergstrom, V., Appelgren,A.,Chyssler,J. et Adersson L., "Initial Observations of Fallout from the Accident at

Chernobyl". *Nature* **321**, 192-3 (1986).

(17) Aoyama,M., Hirose, K., Suzuki,Y., Inove,H. et Sugimura,Y. *Nature* **321**, 819 (1986).

(18) ApSimon, H.M., Wilson, J.J.N. and Simms, K.L. "Analysis of the dispersal and deposition of radionuclides from Chernobyl across Europe". *Proc. R. Soc. Lond. A*,**425**, pp.365-405, (1989).

(19) DeLeeuw,F., Van Aalst,R. and Van Dup,H. "Modellin of Transport and Deposition over Europe of Radionuclides from Chernobyl Accident". 16th International Technical Meeting of Air Pollution and its Applications. Lindau, FRG, 6-10 April (1987).

(20) Roy,J.C., Côté,J.E., Mahfoud,A., Villeneuve,S. and Turcotte,J. "On the Transport of Chernobyl Radioactivity to Eastern Canada". *J. Environ. Radioactivity*, **6**, 121-130, (1988).

(21) Kühn,W., Bunnenberg,C., Handl,J and Töschner,M. "Radioecological Analyses following the Chernobyl Accident". Seminar on the cycling of long-lived radionuclides in the biosphere: observations and models". CEN/JEN, Madrid 1986.

(22) Hurtgen,C., Vynckierd,J. and col. "Accident of Chernobyl. Report of measurements front 1 to 31 May 1986". Working document 86-675,

SCK/CEN, Mol 1986.

(23) Debauche,A. "Accident Tchernobyl. Résultats des Mesures". Documentde travail-21 may 1986. IRE Institut National des Radioelements. I.R.E. B6220 Fleurus.

(24) Barci-Funel,G., Dalmasso,J. and Ardinsson,G. "Radioactive Pollution in the Nice Region after Tchernobyl Accident". Pollution Atmosphérique, 94-95, Janvier-Mars 1989.

(25) Aarkrog,A. "Preliminar conclusions to be draw from the studies of Chernobyl debries in Denmark". Riso National Laboratory, DK 4000Roskilde, Denmark 1986.

(26) Drabova,D. Comunicació personal. 2nd. International Summer School, Low-Level Measurements of Man-Made Radionuclides in the Environment. La Rábida, Huelva, Spain. Junio-Julio 1990 (Llibre pendent de publicació).

(27) Ortega,X. y Vallés, I. "Contribución a la determinación del impacto radiológico en Cataluña originado por el accidente de Chernobyl". II Congreso Nacional de Protección Radiológica. Toledo, 1987, Spain.

(28) Present treball.

(29) Russel Juzdan,Z., Feely,H., Klusek,C.S., Larsen,R. and Leifer,R. "Fallout in the United States of radioactivity following the Chernobyl accident". IV Symposium International de Radioecologie de Cadarache. Tome 1, B1-B17, Cadarache 1988, France.

(30) Garland,J.A. and Cambray,R.S. "Deposition, resuspension and the long-term variation of airborne radioactivity from Chernobyl". IV Symposium International de Radioecologie de Cadarache. Tome 1, B26-B34, Cadarache 1988, France.

(31) De Fortuny,J., Batalla,E., Masalles,I., Rovira,A. "La Surveillance des niveaux de Radioactivité dans l'environnement de la Catalogne apres l'accident de la centrale nucleaire de Tchernobyl". IV Symposium International de Radioecologie de Cadarache. Tome 1, B51-B63, Cadarache 1988, France.

(32) Joshi,S.R.; "Chernobyl radioactivity in Canada: Characteristics and transport." ; Panel Discussion on the Impact of the Chernobyl Accident on the Environment, Seminar on the Cycling of Long-lived Radionuclides in the Biosphere: Observations and Models. Madrid. September 1986.

CAPÍTOL 4.

ESTUDI DEL RADIOCESI EN SÒLS DE BOSCOS DE CATALUNYA.

4.1 INTRODUCCIÓ.

Aquest estudi es va dur terme conjuntament amb el Departament de Biologia Vegetal de la Universitat de Barcelona, dins del conveni signat entre el CIEMAT i la Fundació Bosch Gimpera, sobre la transferència de radiocesi en diferents boscos de Catalunya com a conseqüència de l'accident de la Central Nuclear de Txernòbil.

L'estudi dels radionúclids en el sòl té molta importància ja que és un receptor actiu el qual en contacte amb la capa freàtica i a través d'ell les plantes agafen tots els nutrients. Per tant, el sòl és una via de contaminació indirecta i directa per a l'home; indirecta a través de les plantes, animals i de l'aigua, i directa per exposició.

Els radionúclids que es depositen sobre el sòl poden estar principalment en tres formes: solubles, insolubles o col·loïdals. Segons en quina forma es trobin el sòl els pot captar de manera diferent. Així, en el cas que el radionúclid es trobi en forma soluble es fixa sobre les argiles o la matèria orgànica; en el cas que es trobi en forma insoluble el sòl pot, en unes determinades condicions, solubilitzar-lo i fixar-lo; i finalment en el cas que es trobi en forma col·loïdal, juga un paper de filtre, i en alguns casos es solubilitza atribuint-se aquesta solubilització a la matèria orgànica.

Així segons Saas (1) pel que fa al radiocesi, que és el rádionúclid que s'estudia en el present treball, hom el troba en tres formes diferents:

-) bescanviable i lligat a les argiles
-) bescanviable i lligat a la matèria orgànica, essencialment als àcids fúlvics (2), i
-) no bescanviable i fixat dins de l'estructura de certs tipus d'argiles.

Uns fenòmens molt importants en l'estudi dels radionúclids en el sòl són la migració i la fixació d'aquests en el medi. Els factors que els afecten es poden classificar en: (3)

A) Factors interns, tals com:

- Factors físics (textura o granulometria i estructura).
- Factors químics (pH, sesquioxids, carbonat càlcic, complexos absorbents i saturació de bases.
- Factors biològics (matèria orgànica i microbiologia).

B) Factors externs, tals com:

- Forma química dels radionúclids.
- Condicions del medi (clima, pluviometria).
- Condicions de fertilització.

Pel que fa als **factors interns** cal destacar:

*** Factors físics:**

Textura o granulometria: la seva influència en la migració és funció de la retenció dels radionúclids sobre la superfície de les partícules que constitueixen el sòl. Segons quina sigui la textura del sòl es retenen uns o uns altres radionúclids. Així s'observa que el Cs és fortament retingut pels sòls argilosos, mentre que altres radionúclids (ex.: Ru) que es troben en forma col·loidal són retinguts pels sòls llimosos i saulosos. Les argiles tenen una capacitat de bescanvi elevada però tot i això la seva capacitat de fixació varia segons el tipus d'argila i la forma química del radionúclid.

Estructura: intervé en la lixiviació i la permeabilitat dels sòls. Així, un sòl compacte favoreix el bescanvi mentre que un sòl sauló (filtrant) favoreix la lixiviació. En aquest cas la migració dels radionúclids està relacionada amb l'afinitat pels col·loides i amb la velocitat de percolació de l'aigua. Pel que fa a aquesta velocitat de percolació s'ha observat que la migració del Cs és quasi independent, mentre que la fixació de radionúclids tals com l'Sr, Zn, Ru i Mn és funció de la velocitat de percolació de l'aigua.

*** Factors químics:**

pH: el pH d'un sòl ens pot indicar sota quina forma química i en

quines condicions té lloc la migració o fixació d'un determinat radionúclid. Així, el Cs pot migrar en qualsevol condició de pH, altres metalls poden ser insolubles a valors de pH superiors a 7, mentre que altres poden canviar de forma química ja sigui per hidròlisi o per formació d'anions o cations complexos com és el cas del Ru.

Existència de sesquioxids: com és sabut aquests òxids (Al_2O_3 , Fe_2O_3) tenen una gran facultat d'absorció i per tant poden absorbir fàcilment els radionúclids continguts en el sòl, a la vegada que poden insolubilitzar compostos orgànics pseudosolubles.

Complexos absorbents i saturació de bases: els complexos absorbents d'un sòl el formen els col·loides minerals i orgànics presents. La migració dels radionúclids dependrà de la capacitat de fixació d'aquests col·loides i de la forma en que han estat fixats (absorció, forma bescanviable, forma no bescanviable o fixada, forma de complex). La capacitat de fixació no depèn únicament d'aquest poder absorbent, depèn també de la naturalesa dels radionúclids fixats i en particular de la saturació de bases que tingui el sòl. Així s'ha observat l'importància de la fertilització en la fixació dels radionúclids en el sòl (4).

Carbonat càlcic: aquest contribueix a augmentar el pH d'un sòl i a saturar els complexos absorbents amb Ca ajudant a la insolubilització de molts elements afectant així a la seva mobilitat. Així, per exemple,

en sòls calcaris l'estronci precipita en forma de carbonat fortament insoluble.

*** Factors biològics:**

Aquests factors juntament amb els factors descrits anteriorment juguen un paper important en la migració dels radionúclids en el sòl. Si els factors químics i físics intervenen en la retenció, els factors biològics contribueixen a la transformació de certes formes químiques i a l'evolució dels radionúclids dins dels perfils dels sòls.

Microbiologia: la microflora contribueix a la descomposició de la capa de fullaraca i a la transformació del humus, alliberant així certs radionúclids (5,6). Segons Kokke (7) hi ha microorganismes, bacteris i fongs, que acumulen determinats radionúclids tals com: ^{60}Co , ^{89}Sr , ^{106}Ru , ^{134}Cs , ^{144}Ce i ^{55}Fe .

Aquests microorganismes poden servir per a determinar el grau de pol.lució d'una contaminació accidental.

Matèria orgànica: aquesta intervé en la fixació i transformació dels radionúclids i per tant, llur migració. La matèria orgànica té capacitat de solubilització i de bescanvi (8), pot transportar formes solubles bescanviables i insolubilitzar cations i anions per la formació de

complexos insolubles o per polimerització (9). El % de fixació de radionúclids per la matèria orgànica depèn de l'abundància d'aquesta i del tipus de radionúclid.

En realitat la fixació i migració dels radionúclids en el sòl és el resultat de la interacció de tota una sèrie d'aquests factors. Segons quin sigui el tipus de sòl tindrà més importància uns factors o uns altres; així en el cas d'un sòl calcari el pH i el contingut en CaCO_3 tenen un paper important, mentre que en un sòl àcid (podzol) té molta importància la matèria orgànica i les condicions microbiològiques.

Pel que fa als **factors externs** cal destacar:

*** Forma química:**

En el cas d'un aport directe, tal com s'ha dit anteriorment, els radionúclids poden estar en forma soluble, insoluble o col·loidal. En aquest últim cas caldrà veure llur solubilitat en les condicions del medi. També és important conèixer la composició química del medi per tal de tenir presents possibles interferències degudes a altres cations existents en el sòl. En el cas d'un aport indirecte, com pot ésser la descomposició de les plantes, els radionúclids són alliberats al igual que els compostos orgànics (10). En aquest cas caldrà tenir en compte l'acció de la matèria orgànica, de les argiles i de la microflora.

*** Condicions del medi:**

Clima i pluviometria: aquests factors poden tenir una acció directa o indirecta en la migració i fixació dels radionúclids. L'acció directa es manifesta per la lixiviació dins dels perfils del sòl si la pluviositat és abundant. Aquesta lixiviació pot ser bé dels radionúclids fixats dins de les partícules que són lixiviadades o bé dels elements solubles o adsorbits sobre elles. L'acció indirecta és deguda a l'influència de la pluviositat sobre els factors citats anteriorment. Així, per exemple, el gel inhibeix la microflora i generalment afavoreix la lixiviació; l'alternança d'un temps humit amb un de sec afavoreix les variacions en la forma química dels elements. Les condicions del medi actuen en l'evolució dels compostos orgànics i en la descomposició de la fullaraca.

*** Condicions de fertilització:**

La fertilització dels sòls juga un paper molt important en la fixació dels radionúclids. Hi ha una sèrie d'estudis de diferents autors sobre la influència del N o del K sobre el Cs (4,11-14). L'addició de K a sòls que contenen ^{137}Cs lliure produeix una disminució de la transferència d'aquest radionúclid a la vegetació (15-18). Tant el K com el NH_4 són inhibidors del Cs.

En resum, podem dir que els factors que influeixen en la migració i fixació dels radionúclids en el sòl són molts i a la vegada molt variats.

Tots no tenen la mateixa importància, segons el tipus de sòl tindran més importància uns factors que uns altres. Per altra part, l'acció d'un o un altre factor varia segons quin sigui el radionúclid. Això ens porta a considerar el sòl com un conjunt dinàmic on les interaccions són múltiples.

Així pel que fa al radiocesi, que és el radionúclid que s'estudia en el present treball, els factors que tenen més importància en la seva migració són la textura i la matèria orgànica. Aquest radionúclid es fortament fixat per la matèria orgànica i per les argiles (3,14,17-24), això fa que en els sòls de boscos, on normalment el contingut en matèria orgànica és elevat, els Cs es trobi en els primers centímetres del sòl mineral (25-27) i en els horitzonts orgànics (19,28-30) tant en sòls àcids com bàsics.

Els estudis realitzats sobre la mobilitat de Cs demostren un comportament diferent del que caldria esperar per un catió ideal (31). En els últims anys s'han publicat nombroses revisions, treballs i alguns llibres que fan referència als estudis d'especiació per tal de conèixer la mobilitat del Cs dins del sòl mineral. En general, es pot emprar l'especiació dels elements estables en el medi ambient per predir l'especiació de radionúclids tals com ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{90}Sr , ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{129}I i molts altres.

Les formes químiques dels radionúclids en el medi ambient (capa geològica, sòls, sediments, aigües subterrànies) són factors claus en el possible coneixement de la biodisponibilitat i processos geoquímics.

L'especiació dels radionúclids, tal com té lloc en el medi ambient, és funció de les propietats físiques i químiques dels radionúclids i de les interaccions amb el medi. L'importància d'aquestes interaccions, citades anteriorment, és patent en el ^{137}Cs .

A l'iniciar l'estudi de la distribució del radiocesi en el sòl mineral es va decidir aplicar un mètode clàssic d'especiació sòlida. El mètode escollit va ésser el de Tessier (38) per ser un dels més emprats en l'estudi d'especiació de metalls pesants en sòls i sediments.

4.2 ESTUDI DE L'ACTIVITAT DE RADIOCESI EN MOSTRES DE SÒLS FORESTALS

4.2.1 PRESA DE MOSTRA.

Per a la presa de mostra hom va emprar la metodologia posada a punt al Departament de Biologia Vegetal de la Universitat de Barcelona. Per a aquest estudi hom va considerar els factors que intervenen en la dinàmica del Cs en l'ecosistema: aport, condicions climàtiques, tipus de sòl i vegetació (18,32-34).

A partir de la cartografia existent, el grup de treball del qual formàvem part va seleccionar les possibles combinacions d'aquestes variables, distribuint les parcel·les en les zones amb més contaminació radioactiva segons dades pròpies contrastades amb les obtingudes pel Servei de Coordinació d'Activitats Radioactives de la Generalitat de Catalunya (35).

Tenint en compte les condicions climàtiques hom va considerar les unitats biogeogràfiques que integren el factor climàtic i geogràfic en base a un potencial biològic homogeni expressat pel tipus de vegetació de la zona. Dins de cadascuna d'aquestes unitats biogeogràfiques sòls es varen considerar aquells tipus de sòl que ocupen grans extensions. Hom va considerad les següents zones:

Zona Pirenaica. D'influència atlàntica (Vall d'Aran) i zona central (Cerdanya).

Prepirineu. Zona occidental (Montsec) i Zona oriental (Cadí-Moixeró).

Depressió Central Catalana. Plana de Vic i Zona Central.

Sistema Costaner. Serra litoral (Garraf), Depressió del Penedès i Delta del Llobregat.

Pel que fa al tipus de sòl, hom va considerar aquelles característiques a priori més rellevants en la dinàmica del radiocesi (18,33). Així, hom va considerar sòls bàsics i neutres (carbonatats o més o menys descarbonatats amb el complex de canvi saturat principalment per Ca) i sòls àcids (sense carbonats). També es varen considerar diferències litològiques, ja que condicionen en gran part la composició química i la textura del sòl, i la topografia (sòls de planes al.luvials, profunds; sòls de montanya amb rentats laterals i superficials grans).

En la figura 4.1 hom mostra els punts de presa de mostra.

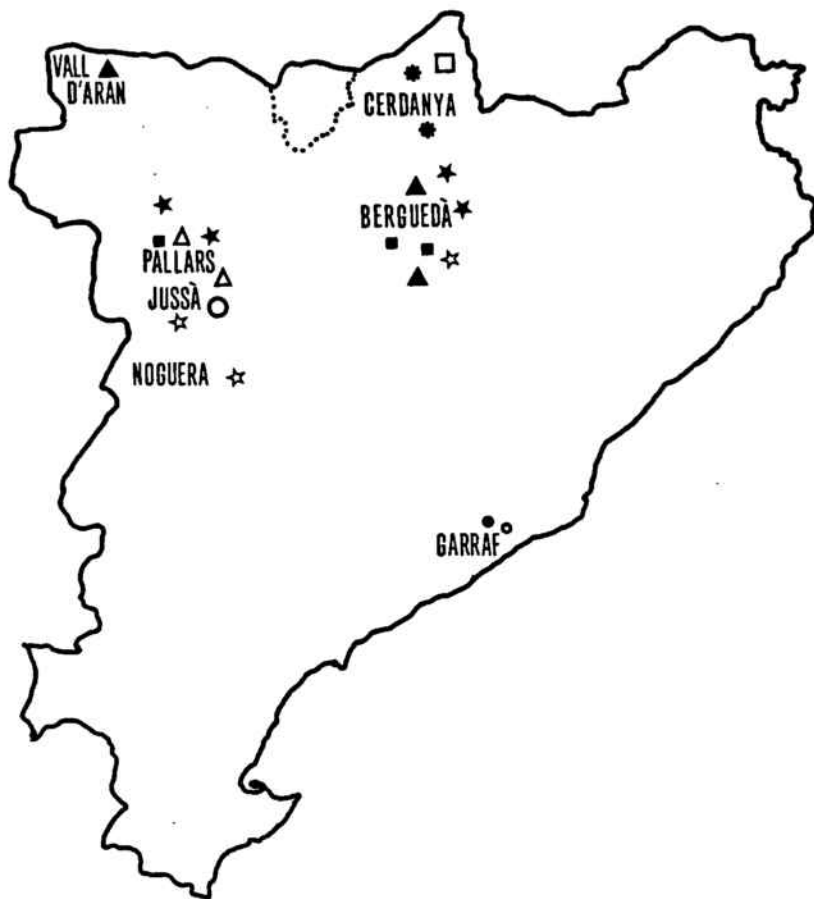


Figura 4.1. Punts de presa de mostra dels boscos de Catalunya.

4.2.1.1. Material de camp emprat en la presa de mostra.

a) Cilindre: emprat per a la presa de mostra dels horitzons orgànics, figura 4.2., té un diàmetre de 21 cm i és metàl·lic. Es mostreja la superfície delimitada per la base del cilindre, per tal de poder expressar els resultats obtinguts per unitat de superfície.

b) Sonda: s'empra per extreure un volum conegut de sòl, el qual permetrà determinar la densitat aparent. És metàl·lica i té una longitud de 20 cm i un diàmetre de 4.7 cm. figura 4.3.

c) Altímetre.

d) Clinòmetre/ Brujula.

e) Claus de 0.5 i de 1 m. de longitud: emprats per a determinar la profunditat aparent del sòl.

f) Pales, ganivets i bosses de plàstic: emprats per a extreure els diferents horitzons orgànics, el sòl mineral i per guardar-los respectivament.



Figura 4.2. Cilindre emprat per a la presa de mostra dels horitzons orgànics.



Figura 4.3. Sonda emprada per extreure un volum conegut de sòl.

4.2.1.2. Presa de mostra de les parcel·les.

Primerament hom va senyalitzar, mitjançant una corda, la parcel·la a mostrejar. Cada parcel·la té una superfície de $25 \times 25 \text{ m}^2$ i es va escollir de forma que fos homogènia en litologia i en vegetació. Una vegada escollida la parcel·la hom va realitzar la presa de mostra en 9 punts diferents tal com s'indica en la figura 4.4.

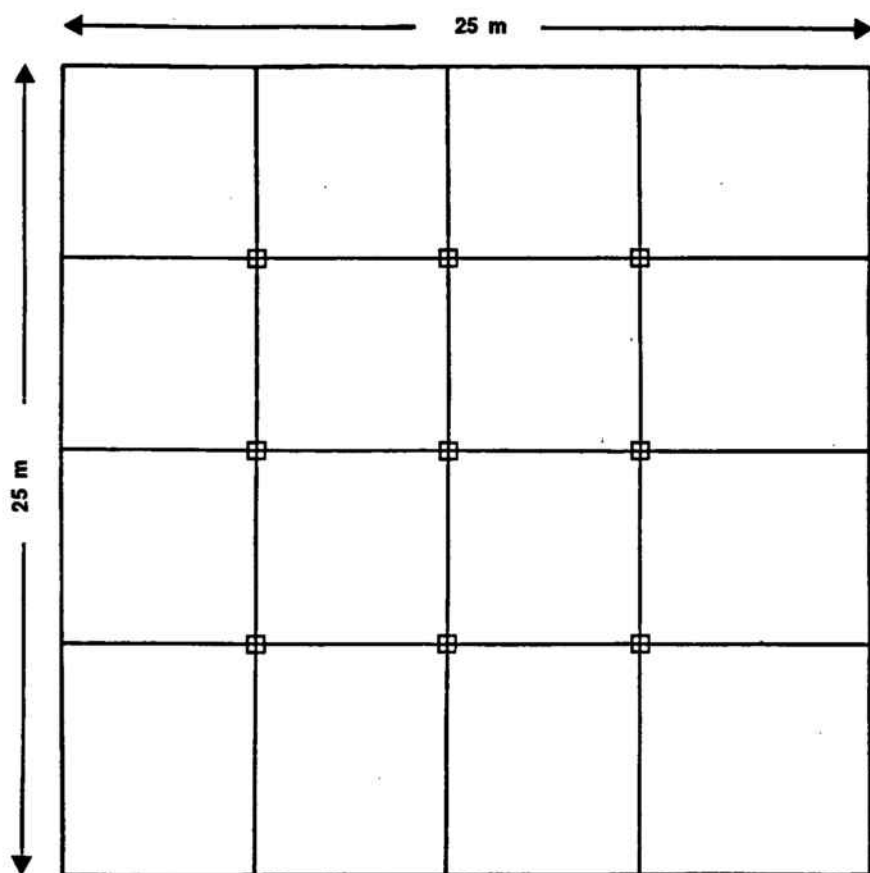


Figura 4.4. Distribució dels punts de presa de mostra dins de cada parcel·la.

Per tal de dur a terme l'estudi de radionúclids gamma en sòls forestals es va realitzar la presa de mostra dels diferents horitzons orgànics (L, F, H o FH) que formen part del sòl forestal i del sòl mineral figura 4.5.

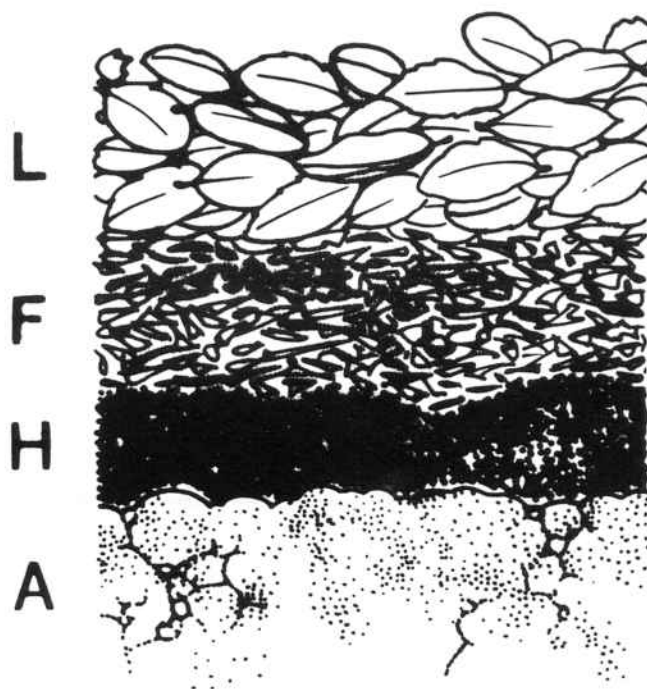


Figura 4.5. Diferents horitzons del sòl forestal.

La metodologia seguida per a la presa de les diferent mostres ha estat la següent:

Horitzons orgànics: en cadascun dels 9 punts de la figura 4.4 hom va mostrear una superfície coneguda, emprant els cilindres

mencionats en l'apartat anterior, separant els diferents horitzons orgànics en funció del grau de descomposició de la fullaraca. Així, tenim:

a) Horitzó L: format per les fulles recentment caigudes, les quals encara estàn senceres i molt poc o gens atacades per la fauna i la flora edàfica.

b) Horitzó F: format per les fulles en els primers estadis de descomposició i fragments de material vegetal que es reconeixen fàcilment.

c) Horitzó H: format per la matèria orgànica en avançat estat de descomposició. Ja no és possible reconèixer el seu origen.

Moltes vegades els horitzons F i H són difícils de separar. En aquest cas s'analitza la fracció >2 mm com a horitzó F i la fracció <2 mm com a horitzó H.

Sòl mineral: hom va mostrejar els 15 cm superiors del sòl mineral en un punt de la parcel·la. Paral·lelament hom va agafar tres sondes d'igual profunditat per tal de determinar la densitat aparent.

Profunditat del sòl: Hom va mesurar la profunditat del sòl en els 9 punts indicats en la figura 4.4 emprant els claus indicats en l'apartat anterior. Per a la seva determinació, hom clava el clau fins que es nota un augment en la resistència que el terreny ofereix a la seva

entrada, la qual cosa indica que s'ha arribat a la roca mare. El valor de la profunditat de sòl és el valor mig dels 9 punts emprats en aquesta determinació.

Totes aquestes mostres són introduïdes en bosses de plàstic per tal de transportar-les al laboratori.

Les parcel·les mostrejades varen ser en total 21:

Bosc caducifolis	12
Bosc perennifolis	8
Matorrals	1

4.2.2. PREPARACIÓ DE LES MOSTRES EN EL LABORATORI.

Horitzons orgànics.

Un cop les mostres arriben al laboratori es procedeix a obrir les bosses de plàstic i es deixa que les mostres s'assequin a l'aire. A continuació, si cal, es du a terme alguna separació de material:

* Horitzó L: si cal, es separa en dues fraccions, fulles i fustes (troncs de diàmetre superior a 5 mm, pinyes,...) que són pesades pes separat. Amb la fracció de les fulles es fa una mostra composta i tritura per a la posterior mesura per espectrometria gamma d'alta resolució.

* Horitzons F i H: es tamissen emprant un sedàs de malla de 2 mm de llum, per tal de separar pedres, fustes, >2 mm i <2 mm. Es pesa, es fa mostra composta de les diferents fraccions i es trituren per a la posterior mesura per espectrometria gamma d'alta resolució.

Sòl mineral.

Es tamissa per un sedàs de malla de 2 mm de llum, a l'igual que els horitzons F i H. Es pesen les dues submostres obtingudes (>2 mm i <2 mm) per tal de determinar el % de graves. La submostra <2 mm és l'emprada per a la posterior mesura per espectrometria gamma

d'alta resolució. Una part d'aquesta mateixa submostra és triturada, emprant un molí de boles, per tal de dur a terme les anàlisis posteriors de caracterització del sòl.

4.2.3. MESURA DE L'ACTIVITAT GAMMA.

Per a les mesures d'activitat gamma de les mostres dels horitzons orgànics i sòl mineral estudiats en aquests treball hom va emprat el detector de Ge intrínsec i la cadena de detecció descrita en els apartats 2.4.

4.2.5. RESULTATS I DISCUSSIÓ.

Hom va estudiar un total de 21 sòls de boscos corresponents a 11 boscos de pins, 4 alzinars, 3 rouredes, 1 fageda, 1 bosc d'avets i 1 parcel.la de garriga.

A la taula 4.1 hom dóna els resultats obtinguts en la caracterització físico-química de les mostres de sòl estudiades. Aquesta caracterització va estar realitzada pels companys del Departament de Biologia Vegetal de la Universitat de Barcelona.

Pel que fa al pH dels sòls estudiats hom observa que és molt variable, amb un interval de valors molt ampli, des d'un pH àcid (pH = 4.9) fins a un pH bàsic (pH = 8.3). La major part de sòls àcids s'han localitzat a la zona del Cadí.

Hom pot observar que la majoria de sòls estudiats són totalment descarbonatats o amb un contingut de carbonats molt baix, excepte les parcel.les X009, X017, X026 i X056 en les quals el contingut en carbonats és més elevat.

Pel que fa al contingut en C_{org} , hom observa que va des d'un valor del 0.81 % fins a un valor màxim del 15.98 %, tot i que en la major part de les mostres el % de C_{org} és molt inferior al 10 %.

Pel que fa al contingut en N hom observa que va des d'un valor del 0.03 % fins a un valor màxim del 0.92 %, tot i que en la major part de les mostres el % de N és del 0.2 al 0.3%.

Pel que fa a la relació C/N hom obté valors dins de l'interval de 9.46 a 20.0.

A la taula 4.2 hom dóna els resultats obtinguts d'alguns dels paràmetres emprats en la caracterització física de les parcel·les estudiades; tals com els percentatges d'argila, llims i sorra, així com la textura corresponent.

Taula 4.1. Resultats de la caracterització físico-química dels sòls.

Parcel·la	pH		d.a.	% CaCO ₃	% C	% N	C/N
	H ₂ O	KCl					
X002 QC	7.7	6.9	1.2	0.50	3.15	0.17	18.5
X011 QI	7.2	6.5	0.8	0.40	5.01	0.34	14.7
X014 QI	8.2	7.4	1.1	8.10	3.12	0.17	18.3
X016 QI	7.3	6.8	1.0	5.37	5.25	0.42	12.5
X026 QI	7.9	7.4	1.0	11.08	4.07	0.27	15.0
X003 PH	7.9	6.9	1.3	4.79	15.98	0.92	17.4
X006 PS	5.4	4.5	1.2	0.00	0.81	0.03	27.0
X017 PS	7.9	7.4	2.0	23.91	3.69	0.24	15.4
X020 PS	7.2	6.7	1.1	1.82	5.41	0.37	14.6
X009 PN	8.3	7.6	1.4	40.00	2.63	0.11	23.9
X015 PN	7.6	7.2	1.0	2.26	4.27	0.17	25.1
X023 PM	5.8	5.2	0.8	0.00	6.86	0.59	11.6
X024 PM	5.5	4.6	1.0	0.00	5.84	0.33	17.7
X038 PM	5.5	4.2	0.9	0.00	5.11	0.28	18.1
X028 PU	4.9	3.5	1.1	0.00	4.35	0.23	18.4
X034 PU	5.8	4.4	1.1	0.00	1.60	0.11	14.5
X027 A	5.9	4.0	1.1	0.00	4.48	0.27	16.3
X054 R	5.1	4.4	0.8	0.00	4.35	0.28	15.5
X056 R	8.0	7.4	1.2	15.99	2.81	0.17	16.5
X060 R	6.5	5.4	1.1	0.00	3.28	0.14	23.5
X059 F	5.7	4.6	1.0	0.00	0.89	0.03	29.7

QC: Quercus coccifera (garriga); **QI:** Quercus ilex (alzina); **PH:** Pinus halepensis (pi blanc); **PS:** Pinus sylvestris (pi roig); **PN:** Pinus nigra; **PM:** Pinus mugo; **PU:** Pinus uncinata (pi negre); **A:** Abies pectinata (avet); **R:** Quercus sp. (roure) i **F:** Fagus sylvatica (faig).

Taula 4.2. Resultats de la caracterització físico-química dels sòls.

PARCEL·LA	SORRA		LLIMS		ARGILES		TEXTURA
	grosa	fina	gros	fi			
X002 QC	0.32	6.73	22.04	22.35	48.56		argilo-llimosa
X011 QI	4.17	9.47	7.54	23.93	54.89		argilosa
X014 QI	4.79	7.83	12.64	28.53	46.21		argilo-llimosa
X016 QI	21.29	18.45	9.72	15.73	34.81		franco-argilosa
X026 QI	24.70	15.76	9.97	22.28	27.29		franco-argilosa
X003 PH	2.19	7.36	13.89	22.58	53.98		argilosa
X006 PS	38.17	45.19	6.26	4.66	5.72		areno-franca
X017 PS	12.25	28.44	17.87	18.76	22.68		franca
X020 PS	13.48	21.14	5.55	19.07	40.76		argi.(fran.-arg.)
X009 PN	1.85	19.95	18.48	27.49	32.23		franco-argilosa
X015 PN	16.20	19.68	11.83	18.07	34.22		franco-argilosa
X023 PM	10.68	10.33	9.68	25.07	44.24		argilosa
X024 PM	17.43	4.77	9.67	35.02	33.11		franco-argilosa
X038 PM	45.12	17.39	4.01	14.90	18.58		franco-arenosa
X028 PU	16.07	6.31	12.35	42.06	23.21		franco-llimosa
X034 PU	53.97	18.21	1.85	14.14	11.83		franco-arenosa
X027 A	18.75	6.91	13.34	36.90	24.10		franco-llimosa
X054 R	31.04	9.20	8.50	24.93	26.33		franca
X056 R	11.35	13.73	12.13	22.47	40.32		argi.-franco arg.
X060 R	27.03	36.01	7.13	10.04	19.79		franco-arenosa
X059 F	54.61	25.96	4.88	7.90	6.65		areno-franca

QC: Quercus coccifera (garriga); **QI:** Quercus ilex (alzina); **PH:** Pinus halepensis (pi blanc); **PS:** Pinus sylvestris (pi roig); **PN:** Pinus nigra; **PM:** Pinus mugo; **PU:** Pinus uncinata (pi negre); **A:** Abies pectinata (avet); **R:** Quercus sp. (roure) i **F:** Fagus sylvatica (faig).

✓

A la taula 4.3 hom dóna els resultats d'activitat de ^{40}K , ^{134}Cs i ^{137}Cs de cadascun dels horitzons de les parcel·les estudiades expressats en Bq Kg^{-1} pes sec $\pm 2\sigma$ i entre parèntesi es dóna el valor corresponent al límit de detecció de la mesura.

Taula 4.3. Activitat de ^{40}K , ^{137}Cs i ^{134}Cs en els diferents horitzons de les parcel·les estudiades agrupats segons el tipus de bosc. Valors referits al dia de presa de mostra. (Bq Kg⁻¹ pes sec $\pm 2\sigma$ (límit de detecció)).

PINUS SYLVESTRIS (Pi roig)

PARCEL·LA	^{40}K	^{137}Cs	^{134}Cs
X006L	<18.8	55.9 \pm 7.1 (2.3)	<2.5
X006F	131 \pm 37 (10)	280 \pm 6.2 (2.6)	14.9 \pm 3.3 (2.4)
X006H	144 \pm 18 (4)	342 \pm 4.0 (2.0)	10.2 \pm 1.7 (1.5)
X006A	219 \pm 7 (2)	15.8 \pm 0.7 (0.2)	<0.2
X017L	77 \pm 16 (4)	27.0 \pm 6.8 (3.8)	10.2 \pm 5.8 (3.4)
X017F	385 \pm 36 (6)	161 \pm 4.9 (2.3)	12.8 \pm 3.4 (2.6)
X017H	247 \pm 25 (7)	184 \pm 5.6 (2.8)	14.6 \pm 2.6 (2.5)
X017A	649 \pm 13 (3)	23.2 \pm 1.1 (0.5)	<0.5
X020L	<5.8	80.8 \pm 3.5 (1.5)	18.2 \pm 3.1 (3.3)
X020F	347 \pm 34 (7)	164 \pm 4.6 (1.3)	3.3 \pm 2.0 (1.8)
X020H	156 \pm 52 (11)	318 \pm 9.4 (2.4)	<3.2
X020A	794 \pm 16 (6)	38.8 \pm 1.7 (1.0)	3.6 \pm 1.4 (1.0)

PINUS NIGRA

PARCEL·LA	^{40}K	^{137}Cs	^{134}Cs
X009L	74 \pm 35 (11)	63.4 \pm 5.2 (3.0)	14.9 \pm 3.3 (3.1)
X009F	222 \pm 30 (7)	139 \pm 5.4 (3.0)	14.0 \pm 3.1 (2.7)
X009H	211 \pm 32 (7)	188 \pm 5.9 (3.0)	18.6 \pm 3.7 (3.1)
X009A	266 \pm 9 (2)	36.7 \pm 0.9 (0.3)	<0.5
X015L	<10.8	53.6 \pm 5.0 (1.9)	8.6 \pm 3.3 (2.0)
X015F	103 \pm 35 (9)	89.6 \pm 4.6 (1.3)	<1.8
X015H	107 \pm 75 (35)	103 \pm 8.2 (5)	<4.1
X015A	304 \pm 9 (2)	39.0 \pm 0.9 (0.4)	2.4 \pm 1.1 (0.6)

PINUS MUGO

PARCEL·LA	^{40}K	^{137}Cs	^{134}Cs
X023L	<7.4	55.0 \pm 5.0 (3.0)	8.9 \pm 3.0 (2.8)
X023F	180 \pm 34 (9)	242 \pm 7.0 (4.0)	6.9 \pm 2.7 (3.3)
X023H	284 \pm 4 (11)	327 \pm 7.0 (3.0)	<2.7
X023A	416 \pm 16 (7)	54.6 \pm 1.6 (0.9)	4.0 \pm 1.3 (0.6)
X024L	<16.0	64.3 \pm 8.6 (5.0)	<3.7
X024F	347 \pm 30 (5)	276 \pm 49 (1.2)	5.9 \pm 2.0 (1.4)
X024H	406 \pm 45 (10)	335 \pm 7.1 (1.9)	<1.7
X024A	774 \pm 23 (5)	35.8 \pm 2.2 (1.0)	<1.5
X038L	57.0 \pm 40.2 (8)	40.2 \pm 4.8 (1.7)	<2.1
X038FH	302 \pm 24 (8)	357 \pm 5.1 (2.3)	7.8 \pm 1.8 (1.5)
X038A	869 \pm 15 (4)	60.2 \pm 1.5 (0.5)	<0.4

Continuació taula 4.3.

PI HALEPENSIS (Pi blanc)

PARCEL·LA	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs
X003L	39±22 (5)	63.9±3.4 (1.7)	15.4±2.9 (2.1)
X003F	144±28 (6)	106±4.2 (1.9)	12.0±4.0 (2.4)
X003H	139±39 (10)	160±4.3 (1.3)	12.6±4.1 (1.7)
X003A	517±9 (2)	15.6±0.8 (0.3)	<0.4

PINUS UNCINATA (Pi negre)

PARCEL·LA	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs
X028L	56±40 (10)	51.5±4.3 (1.6)	<4.1
X028F	184±33 (8)	215±4.5 (7.9)	12.1±2.7 (1.6)
X028H	252±53 (15)	274±7.2 (2.1)	20.8±4.8 (4.4)
X028A	846±16 (6)	29.1±1.5 (0.7)	<0.4
X034L		55.8±3.2 (1.1)	11.9±3.9 (2.3)
X034F	409±30 (7)	193±4.4 (1.9)	24.0±3.1 (2.2)
X034H	768±39 (9)	206±4.3 (1.3)	22.2±3.6 (3.0)
X034A	1330±16 (6)	46.0±1.4 (0.7)	<0.4

QUERCUS ILEX (Alzina)

PARCEL·LA	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs
X011L	57.6±52 (20)	91.5±6.1 (2.2)	25.6±3.9 (2.3)
X011F	211±34 (12)	125±4.0 (1.6)	15.9±2.6 (1.7)
X011H	290±19 (5)	280±3.3 (1.0)	21.1±1.3 (1.1)
X011A	474±24 (6)	36.3±2.8 (0.9)	<1.0
X014L	48.5±37 (11)	76.8±4.2 (1.2)	14.7±2.9 (1.5)
X014F	424±41 (14)	124±6.0 (3.0)	15.3±3.5 (2.1)
X014H	526±43 (11)	266±7.0 (2.0)	<2.4
X014A	579±11 (3)	11.8±1.4 (0.9)	<0.5
X016L	210±60 (15)	37.9±7.6 (4.9)	5.4±4.2 (4.2)
X016F	293±33 (7)	226±5.4 (2.4)	14.9±3.7 (2.9)
X016H	187±16 (4)	272±4.3 (2.0)	15.4±1.8 (1.5)
X016A	479±2 (4)	42.2±1.5 (0.5)	0.9±0.7 (0.5)
X026L	141±35 (8)	19.7±4.7 (3.0)	<2.6
X026F	309±30 (8)	69.8±4.6 (2.6)	3.7±2.3 (2.2)
X026H	416±34 (10)	95.1±5.2 (2.9)	8.4±3.4 (3.0)
X026A	753±10 (2)	39.1±0.9 (0.4)	3.9±1.2 (0.7)

Continuació de la taula 4.3.

QUERCUS COCCIFERA (Garriga)

PARCEL·LA	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs
X002L	<6.3	60.6±3.7 (1.9)	15.4±3.3 (2.6)
X002F	182±38 (8)	133±5.8 (2.8)	<2.2
X002H	216±28 (7)	305±3.8 (0.9)	8.1±2.1 (1.3)
X002A	518±10 (2)	25.5±0.9 (0.3)	<0.6

QUERCUS SP. (Roures)

PARCEL·LA	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs
X054L	108±31 (7)	15.6±2.8 (1.4)	<1.6
X054F	293±29 (8)	167±4.2 (1.6)	10.7±2.2 (1.2)
X054H	114±48 (9)	234±8.0 (2.2)	<2.4
X054A	648±13 (3)	38.8±1.3 (5.2)	4.3±1.2 (0.6)
X056L	40.2±5.2(11)	53.8±4.4 (1.8)	9.4±3.1 (2.2)
X056F	85.2±10 (12)	79.5±6.2 (1.8)	<2.1
X056H	410±66 (17)	201±12 (6.2)	12.9±7.5 (5.0)
X056A	526±18 (5)	17.9±2.2 (1.3)	<1.0
X060L	120±45 (12)	24.1±3.9 (1.7)	<3.6
X060F	126±33 (8)	115±4.0 (1.3)	<2.3
X060H	146±31 (5)	158±6 (2.0)	<2.8
X060A	367±9 (2)	35.0±1.0 (0.3)	<0.5

FAGUS SP. (Faig)

PARCEL·LA	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs
X059L	191±73 (18)	36.4±10.7 (6.6)	<4.6
X059F	152±64 (17)	129±7.4 (3.0)	9.2±3.9 (2.9)
X059H	331±64 (19)	176±8.3 (3.7)	9.6±4.1 (3.8)
X059A	590±10 (2)	10.3±0.9 (0.5)	<0.4

ABIES PECTINATA (Avet)

PARCEL·LA	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs
X027L	109±34 (8)	139±5.6 (2.3)	16.6±3.9 (3.1)
X027F	460±33 (7)	350±6.0 (2.5)	16.7±3.4 (2.6)
X027H	398±32 (7)	423±5.8 (2.3)	18.0±3.6 (2.8)
X027A	785±15 (6)	44.0±1.5 (0.8)	<0.4

A partir dels resultats anteriors hom va calcular el valor mitjà i l'interval corresponent a una vegada la desviació estàndard del % de ^{137}Cs corresponent a l'accident de Txernòbil i del % de ^{137}Cs corresponent al "fallout". Tenint en compte que la relació de $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ deguda a Txernòbil va ésser 0.5. A les taules 4.4 i 4.5 hom dóna els resultats obtinguts al calcular aquest percentatge per a cadascun dels perfils del sòl forestal per unitat de pes i per unitat de superfície respectivament.

Tabla 4.4. Distribució del ^{137}Cs (Bq Kg^{-1}) en els diferents horitzons del sòl.

HORIZÓ	TXERNÒBIL	FALLOUT	TOTAL
L	29.2±12.7	26.4±9.6	55.6±12.6
F	33.8±11.0	135.4±31.6	169.2±35.1
H	34.2±13.1	213.6±41.8	247.8±39.9
A	3.3±2.7	29.8±5.7	33.1±6.2

Tabla 4.5. Distribució del ^{137}Cs (Bq m^{-2}) en els diferents horitzons del sòl.

HORIZÓ	TXERNÒBIL	FALLOUT	TOTAL
L	12.0±5.6	9.2±5.6	22.5±7.9
F	36.0±12.4	143.8±53.9	179.9±60.4
H	55.4±24.8	461.6±193.4	517.0±195.8
A	354.3±315.0	3793.8±764.1	4148.2±808.8

El ^{137}Cs procedent de Txernòbil, en les mostres dels sòls dels boscos, queda comprès en l'interval dels valors mitjans de 12.0 i 354 Bq m^{-2} . La variabilitat entre parcel·les d'una mateixa àrea és similar a la que s'observa entre zones. Això és degut a la heterogeneïtat en la deposició del núvol radioactiu a dins d'una àrea determinada (32,34). Aquesta heterogeneïtat emmascara les possibles diferències entre les diferents localitats.

El ^{137}Cs procedent del "fallout" queda comprès dins de l'interval de valors mitjans de 9.2 a 3794 Bq m^{-2} . En aquest cas també degut a la gran variabilitat tampoc no hi ha diferències significatives entre les diferents zones, els diferents tipus de vegetació i els diferents tipus de sòl.

Tant el ^{137}Cs de Txernòbil com el de "fallout" augmenten de la capa L a la capa H, sense observar-se diferències entre zones ni entre tipus de vegetació.

En tots els horitzons orgànics dels sòls forestals el ^{137}Cs procedent de Txernòbil sempre representa un fracció minoritària del ^{137}Cs de "fallout", excepte en l'horitzó L on aproximadament és el 50%, tal com es pot veure en la figura 4.6 (40). En tots els casos el percentatge de ^{137}Cs procedent de Txernòbil és superior en la capa L.

Pel que fa al sòl mineral, el ^{137}Cs procedent de Txernòbil també representa sempre una fracció molt minoritària del ^{137}Cs de "fallout", com a màxim un 35.9% en el cas de la parcel·la X026 corresponent a un alzinar.

En la mateixa figura 4.6 també es mostra el % de C_{org} (cercles buits) en els diferents horitzons del sòl forestal. Hom pot observar que com més gran és el contingut en C_{org} més gran és la proporció de ^{137}Cs procedent de Txernòbil la qual cosa està d'acord amb estudis realitzats anteriorment (41). També s'observa proporcionalitat entre el contingut de carboni orgànic expressat en Bq m^{-2} i l'activitat total de ^{137}Cs (cercles negres).

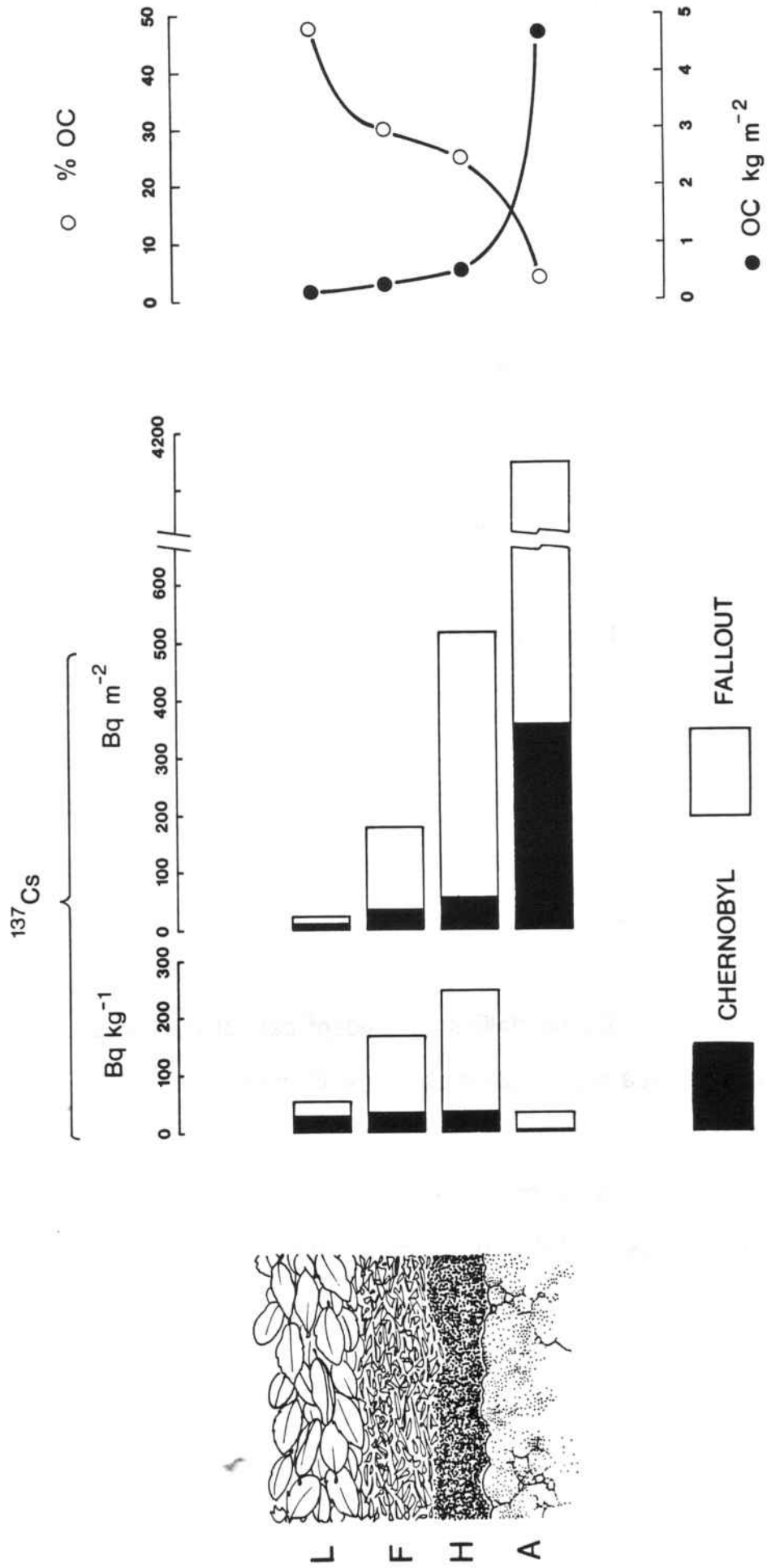


Figura 4.6. Contingut de ¹³⁷Cs i % de C orgànic.

A la figura 4.7 es representa, pels horitzons orgànics el ^{137}Cs total (^{137}Cs Txernòbil + ^{137}Cs de "fallout") en Bq Kg^{-1} en pes sec vs. el % de C orgànic. Hom observa una correl.lació significativa entre el ^{137}Cs i el % de C orgànic ($r=-0.67$). Això també es pot observar en la figura 4.6 en la qual es veu que al augmentar el % de C orgànic l'activitat total específica del ^{137}Cs (Bq Kg^{-1}) disminueix. El fet que aquesta relació sigui negativa es pot interpretar com la suma de diferents factors:

- part de les fulles de la capa L no varen rebre directament l'aport de Txernòbil;
- la major part de C orgànic correspon a formes menys evolucionades de l'humus i menys estables, amb una capacitat de retenció molt més petita (horitzó L) ; i
- l'aport de ^{137}Cs de "fallout" procedent del sòl mineral per part de la fauna edàfica als horitzons H i F (% C menor que en la capa L).

En els horitzons orgànics hom observa una certa correl.lació entre el ^{134}Cs i el ^{40}K ($r=0.37$), així com entre el ^{137}Cs i el ^{40}K ($r=0.45$).

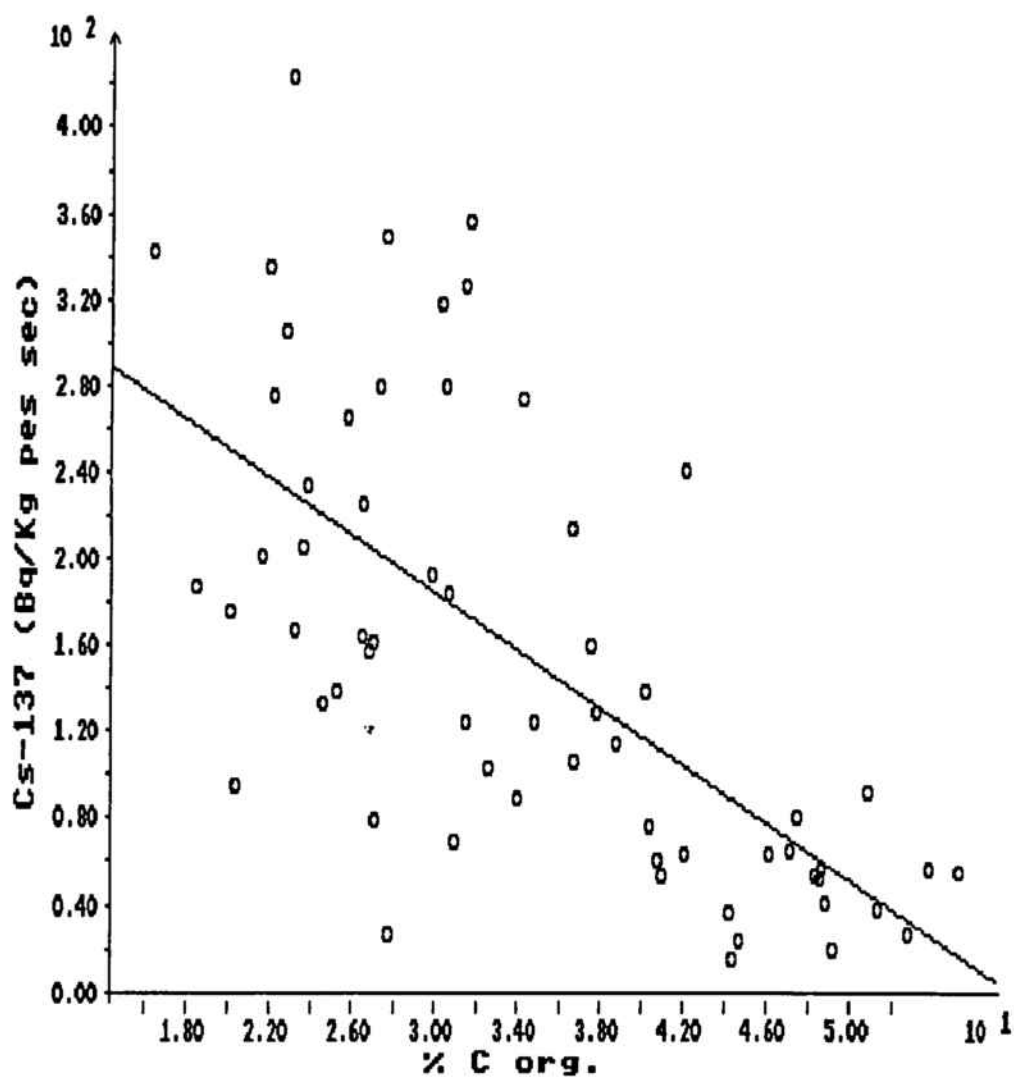


Figura 4.7. Activitat de ¹³⁷Cs total (¹³⁷Cs Txernòbil + ¹³⁷Cs de "fallout") en Bq Kg⁻¹ en pes sec vs. el % de C orgànic en els horitzons orgànics.

Analitzant els diferents horitzons del sòl per separat hom pot dir:

Horitzons L:

En el boscos perennifolis aquest horitzó està constituït majoritàriament per fulles caigudes l'estiu de 1987. Per tant, correspon a fulles que en el moment de la deposició deguda a l'accident de Txernòbil es trobaven a l'arbre.

En els boscos de caducifolis aquest horitzó està constituït per les fulles caigudes la tardor de 1987 i que s'havien format la primavera del mateix any, per tant no varen rebre directament la deposició de Txernòbil. Així, el ^{134}Cs en els boscos caducifolis es troba per sota del límit de detecció mentre que en la major part dels perennifolis és detectable, $27.8 \pm 7.7 \text{ Bq/ Kg}^{-1}$ pes sec ($\pm 2 \sigma$).

Pel que fa al ^{137}Cs , cal dir que aquest es detecta en tots els horitzons L analitzats i que els valors més baixos corresponen als horitzons L de boscos caducifolis.

No s'observen diferències entre les diferents zones estudiades.

Horitzó F:

L'edat mitjana d'aquest horitzó en les parcel·les estudiades és de 2 a 3 anys i per tant part de les restes vegetals i de fullaraca estaven

a l'arbre en el moment de la deposició, éssent d'esperar que el ^{137}Cs detectat procedeixi majoritàriament de Txernòbil. Això no és així, ja que en molts casos és minoritari. Segons Vallejo et al. (40) la causa d'això és la gran activitat de la fauna edàfica, la qual porta a una elevada presència de radiocesi de "fallout" en l'horitzó F.

Així doncs, es poden suposar dos tipus d'aport diferents en l'horitzó F: un aport de radiocesi majoritàriament procedent de Txernòbil a través de l'horitzó L i un aport de radiocesi de "fallout" a través dels horitzons inferiors, on en alguns casos aquest últim és quantitativament més important.

En aquest horitzó hom no detecta diferències entre els tipus de vegetació ni entre les zones.

Horitzó H:

Aquest horitzó està format per materials anteriors a la deposició deguda a l'accident de Txernòbil. Per tant, en aquest cas es pot assegurar que la presència de radiocesi procedent de Txernòbil ha arribat a aquest horitzó per rentat.

En totes les parcel·les estudiades l'activitat de la fauna edàfica en aquests horitzó és molt important la qual cosa pot explicar l'elevat contingut de ^{137}Cs de "fallout" introduït a través del sòl mineral.

En aquest horitzó tampoc no es detecten diferències entre els tipus de vegetació ni entre les zones.

Sòl mineral:

El radiocesi present en els primers 15 cm. del sòl mineral prové majoritàriament del "fallout".

Es detecta ^{134}Cs en 6 de les parcel·les estudiades corresponents quatre a boscos de la zona del Cadí, i dues a parcel·les de la zona del Montsec. Totes elles es troben per sobre del 725 m d'altitud. Aquest ^{134}Cs es suposa que ha arribat al sòl mineral per rentat, ja que tal com s'ha dit el radiocesi procedent de Txernòbil es troba majoritàriament en els horitzonts L i F, resultats concordants amb els obtinguts per altres autors (29,42). A més, aquestes parcel·les en les quals s'hi detecta ^{134}Cs no coincideixen amb les parcel·les en les que hi va tenir lloc una deposició més gran a tot el perfil del sòl. Això es pot explicar per l'efecte més gran de rentat dels perfils orgànics ja que les zones a les quals pertanyen tenen una pluviometria més elevada.

Tot i que en els estudis dels sòls de boscos hi ha una sèrie de factors multivariants que poden emmascarar els resultats, tals com la heterogeneïtat de la deposició o les diferents condicions de descomposició de la matèria orgànica (43), hom observa una certa correl·lació entre el ^{137}Cs i el % de C orgànic ($r = 0.65$) figura 4.8, i el

^{137}Cs i el % de N ($r= 0.62$) figura 4.9. En aquesta representació hom ha eliminat la parcel.la X003 per presentar un comportament totalment anòmal.

Considerant aquells sòls en els quals el ^{134}Cs es troba per sobre del límit de detecció, cal dir que tampoc s'observen diferències significatives entre els sòls amb diferents tipus de vegetació (aciculifolis i planifolis).

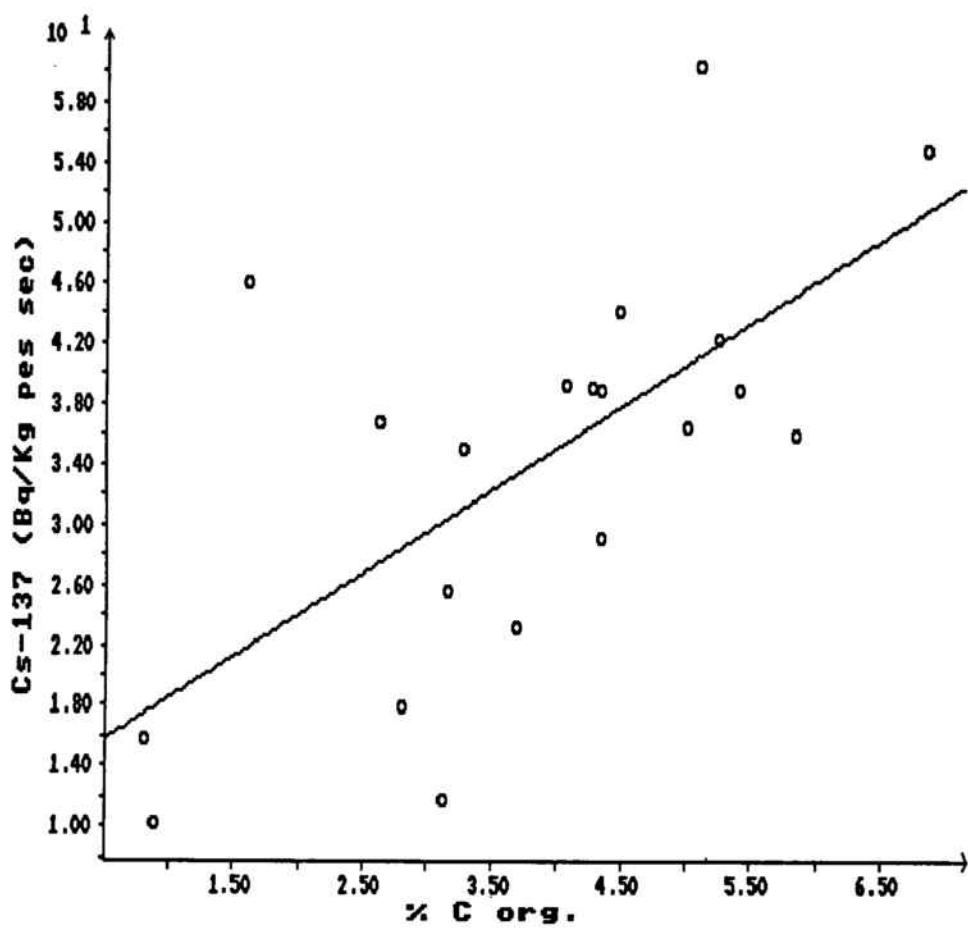


Figura 4.8. Activitat de ^{137}Cs vs. % de C orgànic en les mostres de sòl mineral.

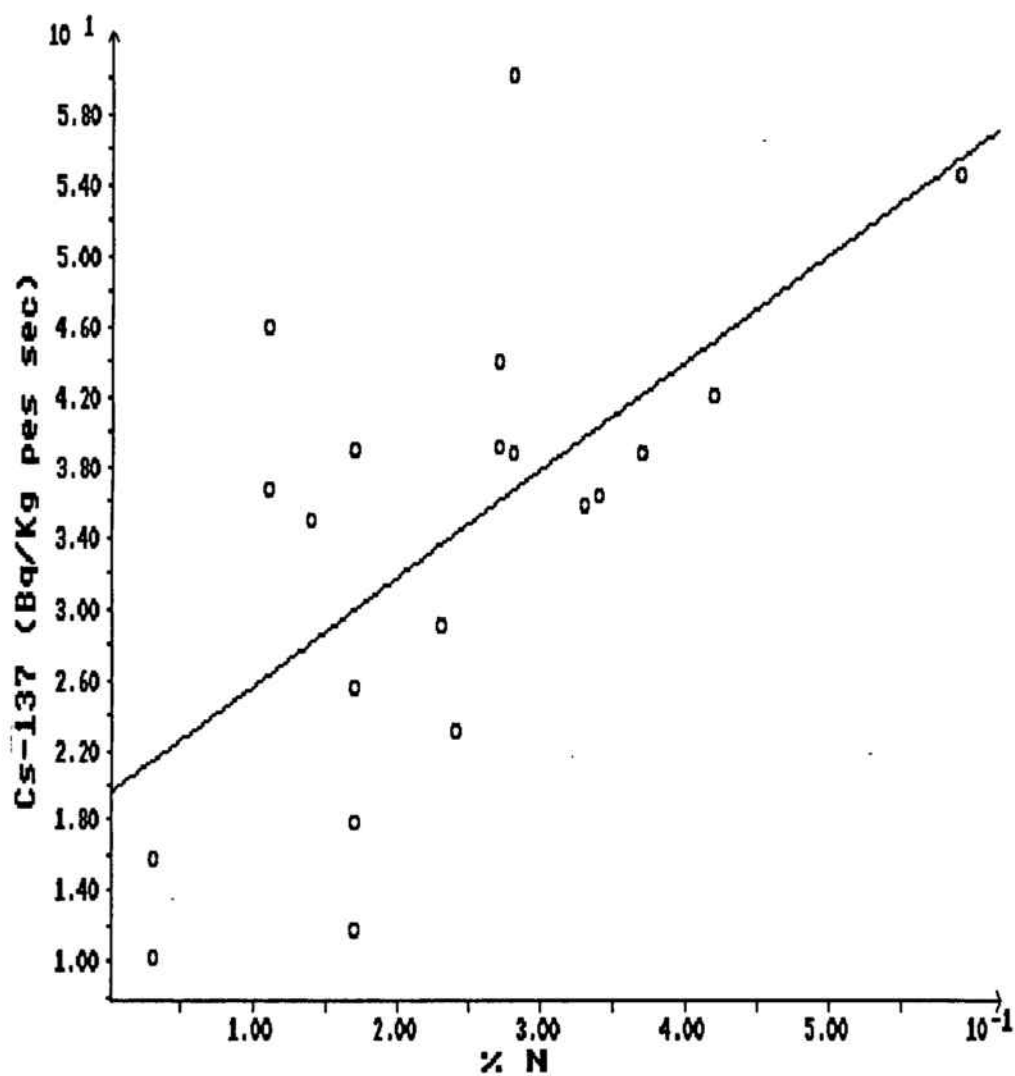


Figura 4.9. Activitat de ¹³⁷Cs vs. % de N orgànic en les mostres de sòl mineral.

Si es reningeix l'anàlisi estadística a 6 parcel·les amb una deposició total similar (2500-3000 Bq m⁻²) la correl·lació lineal entre el % de C orgànic i el ¹³⁷Cs és molt millor, evidenciant una relació ($r = 0.92$), (figura 4.10) entre la matèria orgànica i la capacitat de retenció del radiocesi pel sòl, tal com ja s'havia observat en un treball anterior (41).

A la figura 4.11 hom dona la relació entre el ¹³⁷Cs i el % d'argiles no observant-se cap tipus de correl·lació entre aquestes variables.

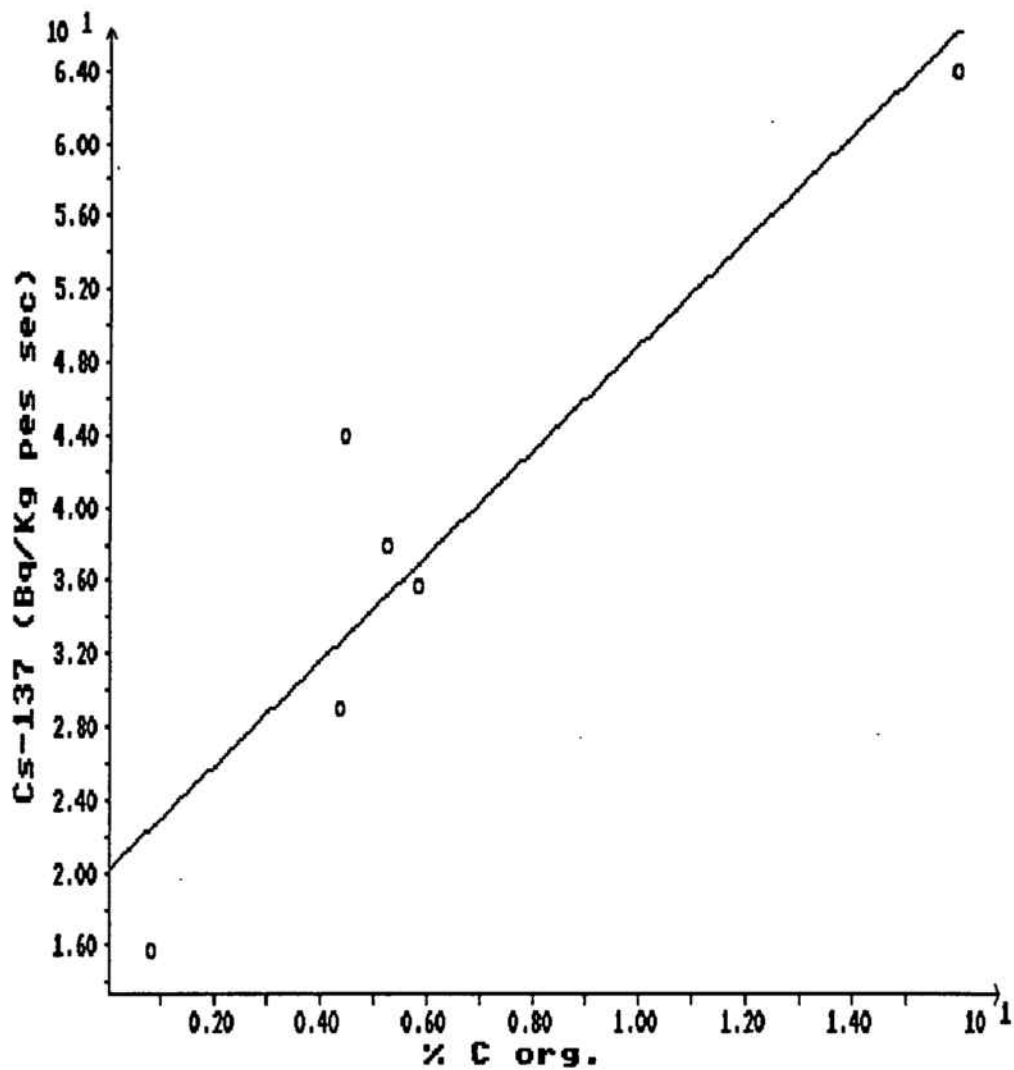


Figura 4.10. Relació entre el % de C orgànic i el ^{137}Cs de 6 parcel·les de amb una deposició total similar (2500-3000 Bq m⁻²).

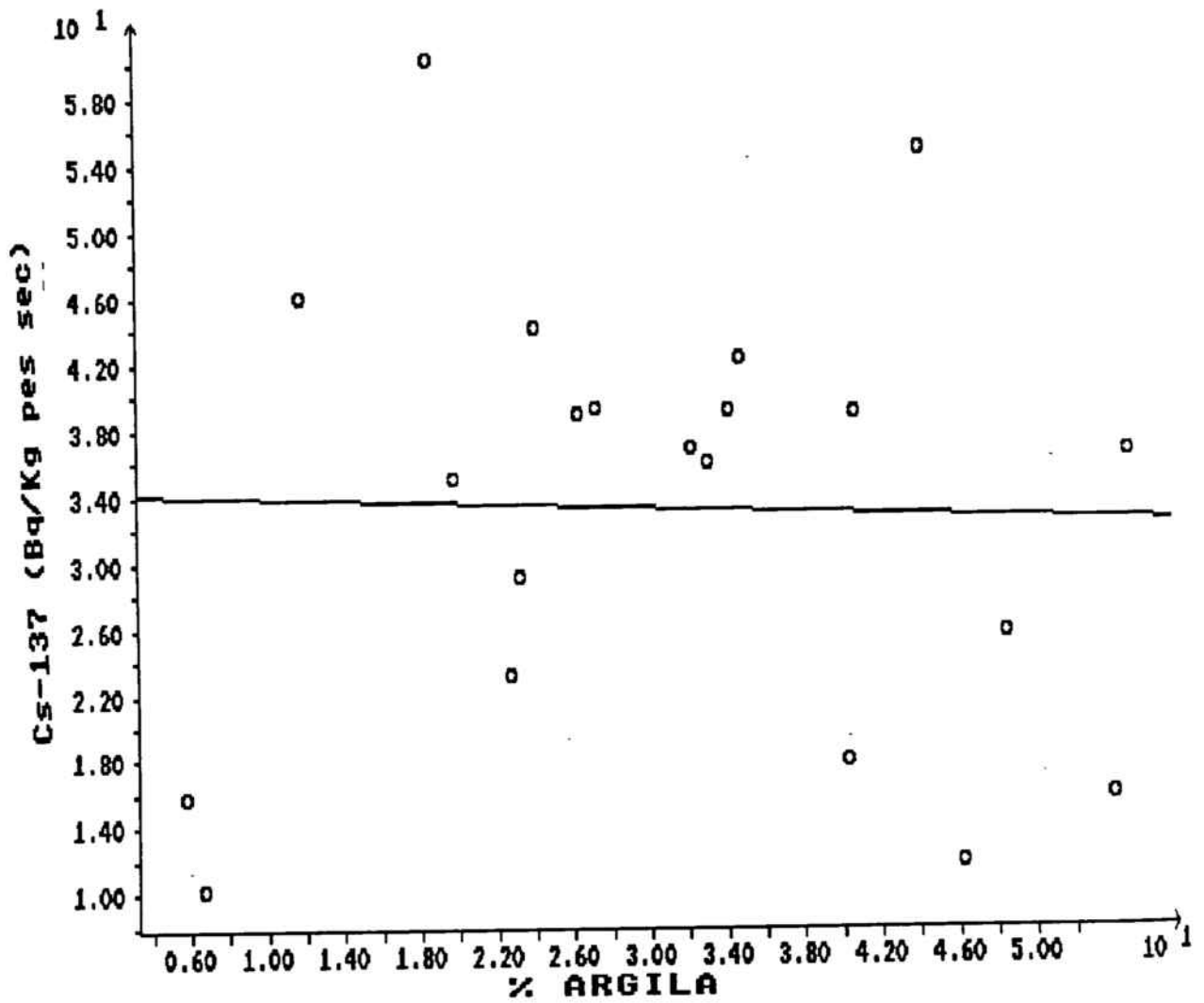


Figura 4.11. Relació entre el ^{137}Cs i el % d'argiles.

4.3 ESPECIACIÓ DE RADIOCESI EN LES MOSTRES DE SÒL MINERAL SEGONS L'ESQUEMA DE TESSIER.

L'esquema de Tessier contempla l'estudi d'extraccions succesives del metall contingut en un gram de sediment sec en cinc etapes. Cada etapa estudia una diferent fracció del metall unida al sediment:

Fracció 1: metall làbil o fàcilment extraïble.

Agent extractant: $MgCl_2$ 1M a pH = 7.0

Volum d'agent extractant: 8 mL.

Temperatura: ambient.

Temps d'agitació: 1 hora.

Fracció 2: metall extraïble a pH = 5.0. S'associa al metall que està principalment lligat a carbonats.

Agent extractant: NaAcO 1M en HAcO fins a pH = 5.0

Volum d'agent extractant: 8 mL.

Temperatura: ambient.

Temps d'agitació: 5 hores.

Fracció 3: metall unit majoritàriament a òxids de Fe i Mn

Agent extractant: NH_2OH HCl 0.04M en HAcO 25% (v/v).

Volum d'agent extractant: 20 mL.

Temperatura: 96 ± 3 °C.

Temps d'agitació: 6 hores amb agitació casual.

Fracció 4: metall unit majoritàriament a la matèria orgànica.

4.1

Agent extractant: H_2O_2 al 30% en HNO_3 fins a $\text{pH} = 2$
(5 mL).

HNO_3 0.02M (3 mL).

Temperatura: 85 ± 2 °C.

Temps d'agitació: 2 hores amb agitació casual.

4.2

Agent extractant: H_2O_2 al 30% en HNO_3 fins a $\text{pH} = 2$
(3 mL).

Temperatura: 85 ± 2 °C.

Temps d'agitació: 3 hores amb agitació casual.

4.3

Agent extractant: NH_4AcO 3.2M en HNO_3 al 20% (v/v)
(5 mL).

Temperatura: ambient.

Temps d'agitació: 30 minuts.

Fracció 5: metall residual.

Agent extractant: HF/HClO_4 (5:1) dues vegades.

Temperatura: evaporar fins a sequedat.

Temps d'agitació: el que calgui en cada cas.

4.3.1 Descripció de les mostres emprades en l'estudi d'especiació del radiocesi.

Hom va dur a terme l'estudi de l'especiació del radiocesi en 4 mostres de sòls forestals de Catalunya, concretament 2 d'elles de la zona del Montseny (Sistema Prelitoral) i les altres 2 de la zona de Cabriels (Sistema Litoral). Hom va tenir la possibilitat de treballar amb una mostra provinent d'un bosc de Austria (Achenkirch.Achensse), on l'impacte de l'accident de la Central Nuclear de Txernòbil va ésser molt més important, la qual cosa va permetre treballar amb mostres de sòl molt més petites.

La descripció de les mostres emprades és la següent:

MOSTRA C1:

La presa de mostra es va dur a terme el 8-10-87 a la zona de Cabriels, a una altitud de 350 m. El perfil del sòl mostrejat va ésser de 0 a 10 cm. La situació d'aquest punt de presa de mostra era un lloc amb molta humitat i gran contingut de matèria orgànica, 56 % C orgànic determinat a partir de la pèrdua de pes a 450°C. L'activitat inicial d'aquesta mostra va ésser de 4.5 ± 1.0 i 49.6 ± 2.0 Bq Kg⁻¹ pes sec de ¹³⁴Cs i ¹³⁷Cs, respectivament.

MOSTRA C2:

La presa de mostra es va dur a terme durant el període Abril-Maig de 1987 a la zona de Cabriels, a una altitud de 285 m. El perfil del sòl mostrejat va ésser de 0 a 10 cm. El contingut de matèria orgànica d'aquesta mostra era molt inferior al de la mostra descrita anteriorment, en aquest cas 6.1 % C orgànic determinat a partir de la pèrdua de pes a 450°C. L'activitat inicial d'aquesta mostra va ésser de 2.0 ± 0.2 i 27.4 ± 0.7 Bq Kg⁻¹ pes sec de ¹³⁴Cs i ¹³⁷Cs, respectivament.

MOSTRA M1:

La presa de mostra es va dur a terme durant el període Octubre-Novembre de 1987 a la zona del Montseny, a una altitud de 400 m. El perfil del sòl mostrejat va ésser de 0 a 10 cm. El contingut de matèria orgànica d'aquesta mostra ve ésser de 29.6 % C orgànic determinat a partir de la pèrdua de pes a 450°C. L'activitat inicial d'aquesta mostra va ésser de 2.1 ± 0.2 i 128 ± 4 Bq Kg⁻¹ pes sec de ¹³⁴Cs i ¹³⁷Cs, respectivament.

MOSTRA M2:

La presa de mostra es va dur a terme durant el període Octubre-Novembre de 1987 a la zona del Montseny, a una altitud entre els 850 m. El perfil del sòl mostrejat va ésser de 0 a 10 cm. El contingut de matèria orgànica d'aquesta mostra va ésser molt elevat, 49 % C orgànic determinat a partir de la pèrdua de pes a 450°C. L'activitat

inicial d'aquesta mostra va ésser de 7.8 ± 0.5 i 137 ± 2 Bq Kg⁻¹ pes sec de ¹³⁴Cs i ¹³⁷Cs respectivament.

MOSTRA R:

La presa de mostra es va dur a terme a l'Agost de 1987 a Austria (Achenkirch.Achensse) a la part nord del país. El perfil del sòl mostrejat va ésser aproximadament de 0 a 10 cm. El contingut de matèria orgànica d'aquesta mostra va ésser del 30 % C orgànic determinat a partir de la pèrdua de pes a 450°C. L'activitat inicial d'aquesta mostra va ésser de 111 ± 6 i 797 ± 12 Bq Kg⁻¹ pes sec de ¹³⁴Cs i ¹³⁷Cs, respectivament. Com es pot observar la deposició deguda a Txernòbil en el Centre d'Europa va ésser molt més gran.

4.3.2 Procediment pel tractament de les mostres.

En cada cas va ésser necessari treballar amb una quantitat de mostra gran, comparant amb 1 g de mostra que descriu Tessier per a l'especiació de traces de metalls pesands en sediments, per tal que el temps de la mesura per espectrometria gamma fos relativament curt (24 h) i els volums de les solucions extractants no fosin excessivament grans.

La quantitat de mostra emprada per a l'anàlisi va ésser de 341.0,

231.2, 237.18, 696.56 i 57.90 grams per a les mostres M1, M2, C1, C2 i R respectivament. El contingut més elevat de radiocesi en la mostra R va permetre treballar amb una quantitat de mostra més petita i per tant amb uns volums de solucions extractants molt més petits.

Una vegada s'ha dut a terme la mesura de l'activitat gamma de la mostra de sòl es comença l'estudi d'especiació emprant l'agent extractant corresponent a la primera fracció de l'esquema descrit en l'apartat 4.5 i mantenint les condicions experimentals de temperatura, temps, pH i agitació. Finalitzada l'extracció es separa la solució per filtració, primerament a través de paper de filtre de fibra de cel.lulosa emprant un embut Buchner i després a través d'un filtre de membrana d'acetat de cel.lulosa de 0.45 μm de grandària de porus emprant l'equip de filtració Millipore. Els filtrats es varen rentar en cada cas amb aigua destil.lada i les aigües de rentat es varen ajuntar amb la solució procedent de l'extracció, mentre que els filtres emprats en la filtració es varen ajuntar amb el residu sòlid.

El filtrat obtingut era concentrat per tal de poder emprar la geometria adequada per a la mesura per espectrometria gamma. La majoria de les vegades era concentrat fins a un volum de 150 mL, excepte en alguns casos en els quals, degut a l'elevat contingut de sals, tenia lloc la precipitació d'aquestes i aleshores era concentrat fins a un volum de 750 mL.

El residu sòlid procedent de l'extracció era assecat a 105°C durant 24 h, s'introduïa a la geometria adequada i es realitzava la mesura per espectrometria gamma. Finalitzada aquesta mesura se seguia amb l'extracció corresponent a la segona fracció de l'esquema i així successivament.

L'atac àcid final (fracció 5) per tal d'extreure el metall residual no es va realitzar, ja que en els cas de l'espectrometria gamma es pot mesurar el metall no extret en les fraccions anteriors per la mesura del residu sòlid un cop realitzada l'extracció de la fracció 4.

4.3.3 RESULTATS I DISCUSSIÓ.

A les taules 4.7-11 hom dona els resultats obtinguts en l'estudi d'especiació emprant el mètode de Tessier per a cadascuna de les mostres. En elles es donen les activitats dels radionúclids ^{134}Cs i ^{137}Cs , així com l'error de la mesura i el límit de detecció. Es mostren els resultats tant pels extractes líquids (indicats per L + nom de la mostra + número de la fracció corresponent), com pels residus sòlids després de l'extracció de cada fracció (indicats per nom de la mostra + número de la fracció corresponent). Cal dir que per a les mostres M2, C1 i C2 no es va fer l'extracció corresponent a la fracció 1, la qual correspon al metall fàcilment bescanviable, ja que hom va suposar que el radiocesi que es trobava en el sòl no era gens làbil tal com s'havia observat en les mostres M1 i R.

Els resultats obtinguts no permeten extreure'n gaires conclusions, tenint en compte a més a més la gran dispersió dels resultats així com els valors baixos d'activitat inicial en la major part de les mostres analitzades. Tot i això, hom pot concloure que el radiocesi es troba majoritàriament lligat en la fracció d'argiles, ja que el residu de sòl després de la quarta extracció presenta una activitat comparable a la inicial i que la fracció on s'extreu el metall lligat a la matèria orgànica (fracció 4) tot i que presenta una lleugera extracció en algunes de les mostres (C2 i R) no és quantitativament important.

Taula 4.7. Extracció segons l'esquema de Tessier de la mostra M1. Valors d'activitat en Bq Kg⁻¹ pes sec $\pm 2\sigma$ (límit de detecció).

MOSTRA	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	GEOMETRIA
FRACCIÓ 1			
M11	1.6±0.7 (0.5)	132±2 (0.8)	750 terra
LM11	LD	LD	750 aigua
FRACCIÓ 2			
M12	2.2±0.8 (0.8)	120±2 (0.5)	750 terra
LM12	LD	LD	750 aigua
FRACCIÓ 3			
M13	1.6±0.7 (0.7)	142±2 (0.7)	750 terra
LM13	LD	LD	750 aigua
FRACCIÓ 4			
M14	LD	104±2 (0.7)	170 terra
LM14	LD	LD	750 aigua

Taula 4.8. Extracció segons l'esquema de Tessier de la mostra M2. Valors d'activitat en Bq Kg⁻¹ pes sec ± 2σ (límit de detecció).

MOSTRA	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	GEOMETRIA
FRACCIÓ 1			
M21	7.8±0.5 (0.4)	137±2 (1.7)	750 terra
LM21	---	---	
FRACCIÓ 2			
M22	7.3±0.9 (0.8)	131±4 (0.3)	750 terra
LM22	LD	LD	750 aigua
FRACCIÓ 3			
M23	8.0±1.0 (0.7)	138±5 (0.7)	750 terra
LM23	LD	LD	750 aigua
FRACCIÓ 4			
M24	4.8±1.4 (0.5)	137±3 (0.9)	170 terra
LM24	LD	LD	750 aigua

Taula 4.9. Extracció segons l'esquema de Tessier de la mostra C1. Valors d'activitat en Bq Kg⁻¹ pes sec $\pm 2\sigma$ (límit de detecció).

MOSTRA	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	GEOMETRIA
FRACCIÓ 1			
C11	4.5±1.0 (0.8)	50±2 (1.3)	750 terra
LC11	---	---	---
FRACCIÓ 2			
C12	6.1±0.7 (0.4)	64±2 (0.8)	750 terra
LC12	LD	LD	750 aigua
FRACCIÓ 3			
C13	4.1±0.5 (0.3)	50±1 (0.7)	750 terra
LC13	LD	LD	750 aigua
FRACCIÓ 4			
C14	---	---	---
LC14	---	---	---

Taula 4.10. Extracció segons l'esquema de Tessier de la mostra C2. Valors d'activitat en Bq Kg⁻¹ pes sec $\pm 2\sigma$ (límit de detecció).

MOSTRA	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	GEOMETRIA
FRACCIÓ 1			
C21	2.0±0.2 (0.1)	27±1 (0.5)	750 terra
LC21	---	---	
FRACCIÓ 2			
C22	1.8±0.3 (0.2)	27±1 (0.5)	750 terra
LC22	LD	LD	750 aigua
FRACCIÓ 3			
C23	2.4±0.5 (0.2)	29±2 (0.9)	750 terra
LC23	LD	3±0.6 (0.4)	750 aigua
FRACCIÓ 4			
C24	0.7±0.4 (0.2)	29±2 (1.3)	170 terra
LC24	LD	0.4±0.2 (0.2)	750 aigua

Taula 4.11. Extracció segons l'esquema de Tessier de la mostra R. Valors d'activitat en Bq Kg⁻¹ pes sec $\pm 2\sigma$ (límit de detecció).

MOSTRA	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	GEOMETRIA
FRACCIÓ 1			
R1	115±6 (5.4)	797±12 (0.8)	100 cendra
LR1	LD	LD	150 aigua
FRACCIÓ 2			
R2	121±4 (4.4)	826±9 (4.0)	100 cendra
LR2	LD	LD	170 aigua
FRACCIÓ 3			
R3	115±5 (4.7)	785±10 (4.8)	100 cendra
LR3	LD	5.5±3.1 (1.6)	150 aigua
FRACCIÓ 4			
R4	108±2 (2.1)	729±6 (1.8)	50 cendra
LR4	LD	23±7.7 (4.9)	750 aigua

Aquests resultats estan d'acord amb els obtinguts per altres autors en estudis realitzats en el laboratori (44), però no concorden amb els obtinguts en l'apartat 4.2.5, referents a l'activitat de radiocesi, on per a les mostres de sòl mineral s'observava un certa relació entre el contingut de C orgànic i l'activitat de radiocesi.

A l'iniciar els estudis d'especiació hom esperava trobar una extracció de radiocesi considerable en l'etapa corresponent a la fracció de metall lligat a la matèria orgànica. Com ja hem dit anteriorment en els estudis d'especiació es troba que el metall està lligat a la fracció de les argiles. Això pot ésser degut a que el procés seguit en l'aplicació del mètode d'especiació no sigui l'adequat. En les diferents etapes d'aquest mètode hi ha temps d'agitació llargs, la qual cosa pot ocasionar el trencament dels col·loides formats per la matèria orgànica present en el sòl mineral i així el radiocesi que es troba unit a aquesta matèria orgànica pot passar a la solució. Una vegada està a la solució pot unir-se o inclús entrar a formar part de la estructura de les argiles degut a l'alta capacitat de bescanvi catiònic d'aquestes.

Actualment en el nostre grup de treball s'estan iniciant estudis aplicant el mètode d'especiació sense agitació, és a dir, treballant amb columnes de sòl mineral a través de les quals flueix el líquid d'extracció, per tal d'eliminar aquest possible trencament dels col·loides orgànics i conèixer així la fracció de radiocesi unit a la matèria orgànica.

4.4 CONCLUSIONS.

L'activitat de ^{134}Cs en les parcel·les estudiades va ésser molt baixa essent no detectable en una gran part d'elles. Degut a aixó la major part dels resultats fan referència al ^{137}Cs .

En els horitzons orgànics dels sòls forestals estudiats tant el ^{137}Cs de Txernòbil com el de "fallout" augmenten de la capa L a la capa H, sense observar-se diferències entre zones ni entre tipus de vegetació.

En tots els horitzons orgànics dels sòls forestals el ^{137}Cs procedent de Txernòbil sempre representa un fracció minoritària del ^{137}Cs total, excepte en l'horitzó L on aproximadament és el 50%. En tots els casos el percentatge de ^{137}Cs procedent de Txernòbil és superior en la capa L.

Pel que fa als horitzons orgànics dels sòls forestals hom observa que a l'augmentar el % de C_{org} més gran és la proporció de ^{137}Cs procedent de Txernòbil, mentre que l'augmentar el % de C orgànic el contingut de Cs total disminueix.

Pel que fa al sòl mineral, el ^{137}Cs procedent de Txernòbil, també representa sempre una fracció molt minoritària del ^{137}Cs de "fallout", com a màxim un 35.9% en el cas de la parcel·la X026 corresponent

a un alzinar.

Analitzant els diferents horitzons del sòl per separat hom pot dir:

Horitzó L:

El ^{134}Cs en els boscos caducifolis es troba per sota del límit de detecció mentre que en la major part dels perenifolis és detectable, $27.8 \pm 7.7 \text{ Bq/ Kg}^{-1}$ pes sec ($\pm 2s$).

Pel que fa al ^{137}Cs , cal dir que aquest es detecta en tots els horitzons L analitzats i que els valors més baixos corresponen als horitzons L de boscos caducifolis.

Horitzó F:

Tot i que caldria esperar que el ^{137}Cs detectat en aquest horitzó procedís majoritàriament de Txernòbil, això no és així, ja que en molts casos el percentatge de radiocesi procedent de Txernòbil és minoritari. Segons Vallejo et al. (40) la causa d'això és la gran activitat de la fauna edàfica, la qual porta a una elevada presència de radiocesi de "fallout" en l'horitzó F.

Així doncs, es poden suposar dos tipus d'aport diferents en l'horitzó F: un aport de radiocesi majoritàriament procedent de Txernòbil a través de l'horitzó L i un aport de radiocesi de "fallout" a través dels

horitzons inferiors, on en alguns casos aquest últim és quantitativament més important.

Horitzó H:

La presència de radiocesi procedent de Txernòbil ha arribat a aquest horitzó per rentat.

En totes les parcel·les estudiades l'activitat de la fauna edàfica en aquests horitzó és molt important la qual cosa pot explicar l'elevat contingut de ^{137}Cs de "fallout" introduït a través del sòl mineral.

Sòl mineral:

El radiocesi present en els primers 15 cm del sòl mineral prové majoritàriament del "fallout".

Es detecta ^{134}Cs en 6 de les parcel·les estudiades corresponents quatre a boscos de la zona del Cadí, i dues a parcel·les de la zona del Montsec. Aquest ^{134}Cs es suposa que ha arribat al sòl mineral per rentat.

En l'estudi dels diferents horitzons dels sòls estudiats no s'observa diferències entre les zones geogràfiques estudiades ni entre les diferents vegetacions.

Hom observa correl.lació entre el ^{137}Cs i el % de C orgànic, el ^{137}Cs i el % de N. Si es rentringeix l'anàlisi estadística a 6 parcel.les amb una deposició total similar (2500-3000 Bq m⁻²) la correl.lació lineal entre el % de C orgànic i el ^{137}Cs és molt més gran.

No s'observa cap tipus de correlació entre el ^{137}Cs total i el % d'argiles.

Dels estudis d'especiació aplicant el mètode de Tessier amb temps d'agitació llarg hom pot concloure que el radiocesi es troba quasi únicament lligat a la fracció d'argiles, la qual cosa pot ésser atribuïda en part al procediment emprat en l'establiment de la fracció de Cs lligat a cada una de les fases del sòl.

4.5 BIBLIOGRAFIA.

(1) Saas,A. et Grauby,A.; "Role de la matière organique des sols sur la fixation et la migration du cesium-137, strontium-90, manganese-54, cerium-144 et ruthenium-106-109." Commissariat à l'Energie Atomique. C.E.N. de Cadarache. S.F.R.P., 155-160, Toulouse 1968.

(2) Maulé,C.P. and Dudas,M.J.; "Preliminary identification of soil separates associated with "fallout" ^{137}Cs ."; Canadian J. of Soil Science; 171-175; Sept.(1988).

(3) Saas,A. et Grauby,A.; "Fixation et migration dans les sols des principaux produits de fission et d'activation". B.I.S.T. Commissariat à l'Energie Atomique. C.E.N. de Cadarache. No. 151, Septembre 1970.

(4) Marckwordt,U.,Mounsny,J.M.; "Availability of radiocaesium in relation to ammonium fertilisation and potassium status of two soils from Allonville."; IVe.Symposium International de Radioécologie, Tome I, 571-587, Cadarache 1969.

(5) Saas,A. et Grauby,A.; "Etude expérimentale de la libération des radionucléides et des éléments minéraux à partir de deux types de litières."; Symposium International de Radioécologie, Tome I, 509-570, Cadarache 1969.

(6) Witkamp,M.and Barzansky,B.; "Microbial Immobilization of Cs-137

in forest litter."; *Oikos* 19, 392, 1968.

(7) Kokke,R.,Van Kleeff,B.H.A., Nieuwdrp,P.J. and Van Zuilekom J.T.; "Accumulation of radionuclides by bacteria and yeasts."; *Symposium International de Radioécologie, Tome I*, 637-653, Cadarache 1969.

(8) Ritchie,J.C., Clebsch,E.E.E. and Rudolph,W.K.; "Distribution of fallout and natural gamma radionuclides in litter, humus and surface mineral soil layers under natural vegetation in the Gratsmokey Mountains, North Carolina-Tennessee."; *Health Phys.* 18, 479, 1970.

(9) Bovard,P., Grauby,A. and Saas,A.; "Effect chelatant de la matière organique et son influence dans la migration des produits de fission dans les sols." *A.I.E.A.*, 471-495, Vienne 1968.

(10) Saas,A., Bovard,P. et Grauby,A.; "Comportement du ruthénium provenant de la décomposition des litières sur différents minéraux et sur un sol brun calcaire.", *Radioprotection*, 14 (4),241-264, 1979.

(11) Colle,C., Cruzelle,C., Ducouso,R. and Grauby,A.; "La fumure potassique: Approche d'une contre-mesure applicable au transfert du césium-137 a partir des sols ferrolitiques." *IV Symposium International*

de radioécologie, D210-D215, Cadarache 1988.

(12) Ronneau,C., Cara,J. and Apers,D.; "The deposition of radionuclides from Chernobyl to a forest in Belgium."; *Atmos. Environ.* **21**, 1467-1468, 1987.

(13) Delmas,J.; "Transfert des radionucléides aux cultures et aux produits agricoles."; *Bull.Inf. Sci. Tech. (C.E.A.)*, **222**, 39.46, 1977.

(14) Clegg,B., Robinson,W. and Holladay,G.; "Remote sensing of soil radionuclides fluxes in a tropical ecosystem."; *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. NS-28, No.1, February 1981.

(15) Tensho,K., Yeh,K. and Mitsui,S.; "the uptake of Sr and Cs by plants from soil with special reference to the unusual Cs uptake by lowland rice and its mechanism."; *Soil and Plant Food*, **6**, 176-183, 1961.

(16) Handley,R. and Overstreet,R.; "Effect of various cations upon absorption of carrier-free Cs."; *Plant Physiol.*, **36**, 66-69, 1961.

(17) Eriksson,Å., Lönsjö,H. and Rosén,K.; "Transfer of cesium to grassland crops in the Chernobyl fallout areas in Sweden in 1986 and 1987."; *IV Symposium International de radioécologie, Cadarache 1988.*

(18) Kühn,W.; Handl,J. and Schuller,P. "The influence of soil parameters on ¹³⁷Cs-uptake by plants from long-term fallout on forest clearings and grassland." *Health Phys.* **46** (5), 1083, (1984).

(19) Henrich,E., Friedrich,M., Weisz,J., Zapletal,M and Haider,W.; "Cs-137 in natural ecological systems. Description of the situation in a high contamination area in Austria after Chernobyl."; IV Symposium International de radioécologie, D-12, Cadarache 1988.

(20) Howard,B.J. and Beresford,N.A.; "Chernobyl radiocaesium in upland sheep farm ecosystem."; *Br. Vet. J.*, **145**, 212, 1989.

(21) D'Souza,T.J. and Mistry,K.B.; "Mobility of gamma-emitting fission products in typical black and lateri soils."; *Indian Soc. Soil Sci.*, **29**(3), 314-321, 1981.

(22) Longmore (McCallan),M.E., O'Leary,B.M., Rose,C.W. and Chandica,A.L.; "Mapping soil erosion and accumulation with the fallout isotope caesium-137."; *Aust.J.Soil Res.*, **21**, 373-385, (1983).

(23) Mitchell,J.A., Mostaghimi,S. Freeny,D.S. and McHenry,J.R.; "Sediment deposition estimation from cesium-137 measurements."; *Water Res.Bull.* **19**, 549-555; (1983).

(24) Tamura,T.; "Selective sorption reactions of cesium with soil

minerals."; Nuclear Safety 5, 262-268; (1964).

(25) Schell,W.R., Breslin,J.P., Tobin, M.J. and Schell,C.W.; "Recycling and removal of radionuclides in forest soil resulting from nuclear accident."; IV Symposium International de radioécologie, Cadarache 1988.

(26) Vandecasteele,C.M., Fagniat,E., Colard,J., Culot,J.P. and Kirchmann,R.; "Transfer of radiocaesium deposited after te Chernobyl accident to agricultural plants." BLG-529, CEN/SCK, Mol (Belgium) 1987.

(27) Jackson,D.; "Chernobyl-derived Cs-137 and Cs-134 in heather plants in northwest England."; Health Physics, 57(3), 485-489, 1989.

(28) Roemmelt,R., Hiersche,L. and Wirth,E.; "Uptake of Cs-134+137 by higher fungi (Basidiomycetes) in terrestrial ecosystems. Biological aspects of the cesium transfer."; IV Symposium International de radioécologie, Cadarache 1988.

(29) Gersper,P.L.; "Effect of American Beech Trees on the gamma radioactivity soils."; Soil Sci. Soc. Amer. Proc., 34, 1970.

(30) Adriano, D.C., Hoyt,G.D. and Pinder,J.E.; "Fallout of cesium-137 on a forest ecosystem in the vivinity of a nuclear fuel reprocessing

plant."; Health Phys., **40**(3), 369-376, 1981.

(31) Ohnuki,T. and Tanaka,T.; "Migration of radionuclides controlled by several defferent migration mechanisms through a sandy soil layer."; Health Physics, **56**(1), 47-53, 1989.

(32) Bachhuber,H.; Bunzl,K. and Dchimmack,W. "Spatial variability of fallout ¹³⁷Cs in the soil of a cultivated field." ; Environ. Monit. Aセス. (1986).

(33) Schuller,P.; Handl,J. and Trumper. "dependence of ¹³⁷Cs soil-to-plant transfer factor on soi parameters."; Health Phys. **55** (3); 575-577, (1988).

(34) Graustein,W.C. and Turekian,K.K. "The effects of forest and topography on the deposition of sub-micrometer aerosols measured by lead-210 and caesium-137 in soils."; Agr. Forest Meteorol.,**47** 2-4, 199, (1989).

(35) De Fortuny, J., Batalla, E., Masalles, I., Rovira, A.; "Monitoring of radioactivity levels in the environment of Catalunya after the accident of the Chernobyl nuclear plant." IVe.Symposium International de Radioécologie, Tome I, B-51, Cadarache 1988.

(36) Dupuis, P.; "Dosage des carbonates dans les fractions granulométriques de quelques sols calcaires et dolomitiques."; Ann. Agron., **20**(1), 61-69, 1969.

(37) Allinson, L.E. and Moodie, C.E.; Methods of soil analysis. Agronomy 9, part 2., 1965.

(38) C.M.A. del INEA, "Determinaciones analíticas de suelos. Normalización de métodos." José M. Albareda; Anales Edaf. Agrob.XXXII, 11-12, 1153-1172.

(39) Tessier, A., Campbell, P.G.C. and Bisson, M.; "Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals."; Anal. Chem., **51**, 844-851, 1979.

(40) Rauret, G. et al. "Estudio de la transferencia de radiocésio en Cataluña en el marco de un accidente nuclear" Informe final CIEMAT, 1990. IV Symposium International de radioécologie, Cadarache 1988.

(41) Rauret, G., Sánchez-Reyes, A. Llauredó, M. Febrian, M.I. and Tejada, J.; "Transference factor of radiocaesium for different compartments of a mediterranean forest and its relation with the organic matter content in soils.";

(42) Bunzl, K., Schimmack, W., Kreuzer, K. and Schierl, R.; "The

migration of fallout ^{134}Cs , ^{137}Cs and ^{106}Ru from Chernobyl and of ^{137}Cs from weapons testing in a forest soil."; *Z.Pflanzenernähr.Bodenk*, **152**, 39-40, (1989).

(43) Andolina,J and Guillitte,O.; "Radiocesium availability and fixation sites in forest humus."; Workshop: The transfer of radionuclides in natural and semi-natural environments. Udine (Italy), (1989).

(44) Maes,A. and Cremers,A.; "Radionuclides in soils and sediments: Oxide-Organic Matter Competition."; *Speciation of Fission and Activation Products in the Environment*. Elsevier Applied Science Publishers. ISBN 0-85334-422-1. (1986).

CAPÍTOL 5.

**MESURA DEL CONTINGUT RADIOACTIU PER
ESPECTROMETRIA GAMMA D'ALTA RESOLUCIÓ EN
SEDIMENTS MARINS A LA COSTA DE BARCELONA.**

5.1 INTRODUCCIÓ.

L'estudi del contingut de radioactivitat gamma en sediments marins de la costa nord de Barcelona, forma part del Projecte SPIO. L'SPIO és un projecte interdisciplinari en el qual hi va participar el Departament de Química Analítica de la Universitat de Barcelona en els estudis de metalls pesants i de radioactivitat.

L'objectiu d'aquest és l'estudi dels sediments formats a conseqüència dels abocaments, al litoral nord de Barcelona, dels llocs de la depuradora d'aigües residuals de Sant Adrià del Besòs. Aquest indret, a més dels llocs de l'emissari de la planta depuradora, rep el material aportat pel riu Besòs el qual desemboca en aquesta zona.

Els radionúclids que arriben a l'aigua poden arribar als sediments per sorció en els sòlids en suspensió que després es dipositaran sobre el fons. Tot i que els sediments no són una via de transferència directa per a l'home si que són una via indirecta ja que els radionúclids continguts en els sediments poden passar per resuspensió o per redissolució a l'aigua i al biota. Així, del 5 % al 20 % del contingut de ^{137}Cs dels peixos és atribuït als sediments (1), alhora que també poden ésser una font d'irradiació externa. Els sediments fixen i concentren certs radionúclids tals com el Cs i el Ru. Això depèn de la capacitat de sorció i de bescanvi iónic, així com de la salinitat de l'aigua, de la

naturalitat dels radionúclids i de llur activitat específica, de la concentració de matèria en suspensió i de la granulometria.

L'ample ús de radionúclids a la indústria, a la medicina i a la recerca fa que en un estudi com és el de l'efecte dels llots submarins de la zona del riu Besòs sobre la zona costanera de Barcelona, hagi de contemplar com a pol·luents d'interès els possibles radionúclids existents a l'àrea estudiada.

Per altre banda, l'accident de la central nuclear de Txernòbil (Abril de 1986) ha incorporat al medi una quantitat important de radionúclids, en especial ^{134}Cs i ^{137}Cs , els quals en certa manera poden haver arribat ja al medi marí el que suposaria un increment dels nivells d'activitat. La presència de radiocesi d'incorporació recent pot donar una informació molt valuosa pel que fa a la possible àrea d'influència dels abocaments efectuats en la zona estudiada.

Per tal de mesurar els radionúclids esmentats hom ha triat mostres pertanyents a cadascuna de les tres zones de mostreig que integren el projecte SPIO. Aquestes zones són: zona 1, d'1 Km de radi, corresponent a l'abocament de llots de l'emissari de la planta depuradora de Sant Adrià del Besòs situat a una alçada de 40-50 m del nivell del mar i a 4-5 Km de la costa; la zona 2, abarca un semicercle de 1 Km de diàmetre i correspon als aports provinents del

riu Besòs; i la zona 3 correspon a una zona relativament allunyada de l'influència de les dues anteriors situada davant mateix de la ciutat de Barcelona. Hom va triar un punt considerat com no afectat pels abocaments del riu Besos ni per l'emissari com a punt de referència o blanc.

Hom va dur a terme un estudi de perfils de profunditat per tal de conèixer la possible evolució de la pol·lució amb el temps. L'estudi dels perfils de profunditat pot donar informació pel que fa a la velocitat de sedimentació i a l'edat dels sediments, ja que el ^{137}Cs i altres productes de fissió juntament amb els isòtops produïts per activació, tenen llur origen en les aplicacions militars de l'energia atòmica. Això ha donat lloc a l'aparició d'uns pics ben definits de màxima activitat anomenats horitzons marcadors corresponents a les explosions nuclears dels anys 1954 i 1961-1962 (2). Aquests horitzons marcadors han estat observats tant en mostres preses amb cores en els casquets polars com en mostres de cores de sediments marins.

5.2 PRESA DE MOSTRA.

A la taula 5.1 s'indiquen les coordenades geogràfiques i la profunditat per cada punt de la presa de mostra. A la figura 5.1 es mostra la situació dels punts de la presa de mostra, on hom pot distingir tres zones clarament diferenciades.

Taula 5.1. Coordenades geogràfiques i profunditat dels punt de presa de mostra.

Mostra	Latitud N	Longitud E	Profunditat (m)
F	41° 23.30'	02° 15.34'	49
Z	41° 23.00'	02° 15.40'	52
Z'	41° 21.76'	02° 14.01'	-
21	41° 23.22'	02° 15.15'	50
19	41° 22.35'	02° 13.95'	58
O	41° 22.18'	02° 12.80'	40
O'	41° 22.30'	02° 12.60'	39
M	41° 23.11'	02° 13.62'	40
L	41° 23.66'	02° 13.09'	18
L'	41° 23.63'	02° 13.40'	23
N	41° 22.75'	02° 11.80'	19
N'	41° 22.74'	02° 12.20'	23
W	41° 24.26'	02° 14.41'	33
V	41° 24.68'	02° 14.27'	18
08	41° 24.76'	02° 14.84'	32
27	41° 25.00'	02° 14.05'	10
27	41° 24.84'	02° 14.12'	10
32	41° 25.22'	02° 16.73'	43
32'	41° 25.78'	02° 16.55'	40

* Mostres corresponents a la segona campanya de presa de mostra.

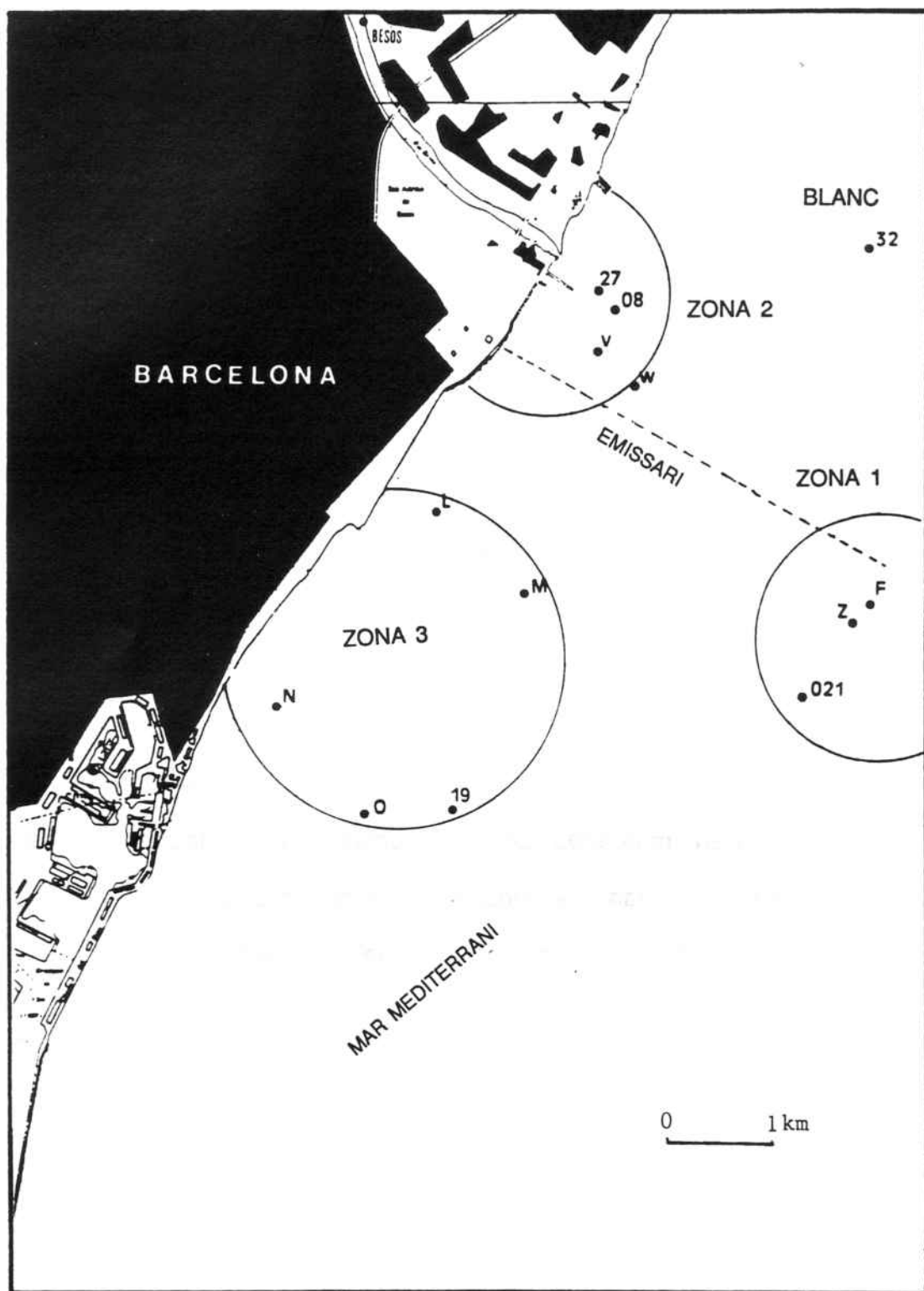


Figura 5.1. Situació dels punts de presa de la mostra.

Les mostres varen pendre's a una profunditat de 40-50 m en la zona 1, de 35-40 m en la zona 2 i de 30-40 m en la zona 3.

Les mostre varen ésser preses amb un testimoni de caixa (superfície 30x20 cm² i 60 cm d'alçada) per tal de fer la presa de mostra sense mesclar els sediments. Per a l'obtenció de perfils, algunes mostres (O, M, V, 32 i 32') varen ésser tallades en seccions transversals d'uns 2 cm de gruix.

Pel seu transport fins al laboratori es varen emprar bosses de plàstic.

Les mostres varen prendre's els dies 11 i 12 de novembre de 1987, 24 i 25 de febrer de 1988. Les mostres corresponents al segon mostreig estan marcades amb un asterisc a la taula 6.1. Les campanyes de presa de mostra es varen realitzar amb el buc oceanogràfic B/O García del Cid, propietat del CSIC.

5.3 PREPARACIÓ PRÈVIA DE LA MOSTRA.

Inicialment les mostres es van assecar a l'estufa a 105 °C durant un temps de 48 hores. Una vegada seques van haver-se de triturar emprant un molí de boles, ja que un cop seques aquestes van quedar en forma de masa compacta la qual cosa va fer impossible la seva tamitssació. Seguidament les mostres es van introduir a la geometria corresponent i finalment es va dur a terme la seva mesura.

L'estimació del contingut de matèria orgànica es va dur a terme pel mètode de combustió a 500 °C.

5.4 MÈTODE ANALÍTIC.

Totes les mesures van fer-se per espectrometria gamma d'alta resolució emprant el detector coaxial de Ge(Li) marca Ortec, model GLI-10200, i la cadena de detecció descrita en l'apartat 2.1 d'aquest estudi.

Per a les anàlisis qualitativa i quantitativa, dels espectres obtinguts en les mesures, es va procedir de la forma indicada en l'apartat 2.4. Per a aquest estudi de sediments marins hom ha emprat la geometria cilíndrica de 750 cm³ i de 7.5 cm d'alçada.

Els temps de mesura es donen a la taula 5.2 en la qual es fa constar també el pes de mostra emprada.

Taula 5.2. Temps de mesura i quantitat de mostra.

Mostra	Temps mesura (s)	Quantitat mostra (gr)
F	79948	415.90
Z	65321	591.18
Z'	61537	517.02
21	83008	526.96
19	86231	541.23
O	59526	654.04
O'	61452	648.12
M	62575	502.68

Taula 5.2. Continuació.

Mostra	Temps mesura (s)	Quantitat mostra (gr)
L	64278	557.86
L	94538	567.70
N	62147	612.70
N	160713	735.92
W	85179	433.42
V	75632	578.23
08	76896	532.57
27	82895	828.95
27	140000	530.57
32	89541	562.35
32	98435	592.87
01	64710	600.15
02	91201	543.92
03	143889	625.04
04	67198	558.18
M1	71707	574.18
M2	76286	500.44
M4	78326	532.24
M5	63274	632.68
V1	63705	630.92
V2	67947	657.40
32-1	62589	535.63
32-2	64055	520.64
32-3	68256	528.54
32-1	60295	595.62
32-2	81432	595.90
32-3	85724	500.14
32-4	63595	553.78
32-5	80750	560.24

* Mostres corresponents a la segona campanya de presa de mostra.

5.5 RESULTATS I DISCUSSIÓ.

A les taules 5.3 i 5.4 hom dona els valors trobats a les determinacions dels radionúclids naturals ^{40}K , ^{228}Ac , ^{214}Bi i ^{214}Pb per cada punt de la presa de mostra.

Taula 5.3. Activitat dels principals radionúclids naturals.

Activitat (Bq/Kg pes sec)				
Mostra	^{228}Ac	^{214}Bi	^{214}Pb	^{40}K
F	26.4±1.6	19.2±1.1	20.5±1.3	403±12
Z	33.4±1.5	25.4±1.3	25.7±1.3	556±15
Z'	33.4±2.6	24.9±1.3	25.3±1.0	537±13
21	29.4±2.1	19.8±2.0	20.7±1.6	469±16
W	30.5±3.2	19.4±2.0	21.8±2.0	485±13
08	29.1±1.6	23.0±1.3	24.1±1.1	549±12
27	21.2±1.6	14.3±1.8	14.4±0.8	437±10
27'	31.9±2.2	23.2±1.6	25.5±2.3	548±15
V	27.7±1.6	21.1±1.0	22.0±1.1	456±10
L	26.3±1.5	23.6±0.9	24.0±1.5	478±16
L'	31.0±1.5	19.3±2.2	21.5±2.5	531±14
N	20.0±1.2	16.1±1.5	15.5±1.3	556±15
N'	28.8±2.8	22.8±1.8	23.0±1.4	450±17
19	30.0±2.0	21.4±1.6	21.7±1.8	519±15
M	31.0±2.0	20.3±1.8	22.0±1.3	531±12
O	37.8±3.5	25.4±2.0	27.1±2.0	597±15
O'	28.6±2.0	22.2±1.8	23.0±0.9	502±12
32	36.8±3.0	22.8±2.3	22.7±2.3	524±10
32'	39.1±3.1	23.3±1.4	24.5±1.5	624±20

Taula 5.4. Activitat dels principals radionúclids naturals en els perfils en profunditat, de les mostres O, M, V, i 32.

Mostra	Activitat (Bq/Kg d.w.)			
	²²⁸ Ac	²¹⁴ Bi	²¹⁴ Pb	⁴⁰ K
O1	37.8±3.5	25.4±2.0	27.1±2.0	597±15
O2	32.8±1.6	23.0±1.2	24.1±1.4	537±13
O3	34.1±1.5	23.8±1.0	24.3±1.5	523±12
O4	38.3±1.5	24.9±1.5	25.3±0.9	556±14
M1	31.0±2.0	20.3±1.8	22.0±1.3	531±12
M2	27.8±1.5	21.1±1.0	22.1±1.3	560±12
M4	35.0±1.7	24.1±1.3	25.1±1.5	575±15
M5	33.0±2.3	22.5±1.6	23.6±1.2	506±13
V1	27.7±1.6	21.1±1.0	22.0±1.1	456±10
V2	25.2±1.4	18.9±1.4	18.9±1.1	526±12
32-1	36.8±3.0	22.8±2.3	22.7±2.3	524±10
32-2	38.6±2.0	24.5±1.6	26.4±1.3	601±13
32-3	40.3±2.0	24.5±1.4	24.0±1.3	599±14
32 ⁻ -1	39.1±3.1	23.3±1.4	24.5±1.5	624±20
32 ⁻ -2	35.4±3.0	22.8±2.1	21.5±2.0	556±10
32 ⁻ -3	40.8±4.0	23.4±2.0	23.4±2.0	634±12
32 ⁻ -4	43.0±6.0	23.5±2.1	23.2±3.0	635±18
32 ⁻ -5	41.3±4.0	23.3±1.4	24.5±2.2	610±12

A les taules 5.5 i 5.6 hom dóna els valors trobats pels radionúclids artificials ¹³⁷Cs i ¹³⁴Cs així com el contingut en matèria orgànica per cada punt de la presa de mostra.

Taula 5.5. Activitat del radiocesi i percentatge de materia orgànica.

Activitat (Bq/Kg pes sec)			
Mostra	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	% de mat. org.
F	<0.1	7.8±0.4	13.5
Z	0.7±0.3	6.1±0.6	5.5
Z'	<0.4	3.8±1.0	5.2
21	<0.2	7.1±0.4	9.5
W	<0.4	7.7±0.7	11.7
08	<0.2	7.9±0.5	8.1
27	<0.2	1.6±0.2	1.5
27'	<0.1	5.0±0.6	6.2
V	<0.3	5.2±0.4	4.5
L	0.7±0.3	6.2±0.4	6.0
L'	<0.4	8.7±1.5	11.5
N	<0.2	2.8±0.4	2.5
N'	<0.2	7.6±0.9	7.3
19	<0.3	5.5±0.7	4.5
M	<0.2	9.0±0.4	8.7
O	<0.3	9.9±0.8	6.9
O'	<0.2	8.6±0.5	8.3
32	<0.4	5.6±0.7	4.5
32'	<0.3	5.8±1.0	6.0

Taula 5.6. Activitat del radiocesi i percentatge de matèria orgànica en els perfils en profunditat de les mostres O, M, V i 32.

Mostra	Activitat (Bq/Kg pes sec)		
	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	% de mat. org.
O1	<0.3	9.9±0.8	6.9
O2	<0.2	8.6±0.5	7.4
O3	<0.2	9.3±0.5	6.0
O4	<0.2	9.8±0.5	6.0
M1	<0.2	9.0±0.4	8.7
M2	<0.3	10.6±0.7	8.8
M4	<0.3	10.4±0.6	7.8
M5	<0.2	10.5±0.6	7.2
V1	<0.3	5.2±0.4	4.5
V2	0.5±0.2	7.3±0.6	4.4
32-1	<0.4	5.6±0.7	4.5
32-2	0.7±0.3	6.5±0.4	4.4
32-3	<0.2	4.8±0.4	4.3
32-1	<0.3	5.8±1.0	6.0
32-2	<0.3	4.1±0.6	4.7
32-3	<0.2	1.3±0.7	4.8
32-4	<0.2	<0.4	4.4
32-5	<0.4	<0.4	4.4

A la taula 5.7 hom dóna els intervals en els quals es troben els límits de detecció pels diferents radionúclids determinats.

Taula 5.7. Interval dels límits de detecció pels diferents radionúclids.

Radionúclid	Valor mínim	Valor màxim
^{228}Ac	0.32	2.60
^{214}Bi	0.34	1.30
^{134}Cs	0.04	0.53
^{137}Cs	0.30	0.65
^{40}K	1.93	9.31
^{214}Pb	0.35	1.92

Els radionúclids naturals es troben a les concentracions esperades. El ^{40}K és el radionúclid més abundant, amb nivells compresos entre 403 i 645 Bq/ Kg de sediment sec. Aquests valors coincideixen amb els trobats en sorres d'aquesta zona de la costa Catalana (3). L' ^{228}Ac i el ^{214}Pb són menys abundants i llurs continguts es troben entre 20 i 30 Bq/ Kg i entre 14 i 29 Bq/ Kg de sediment sec respectivament. Aquests són valors normals en sediments del Mediterrani (4,5,6) i en del Atlàntic (7). A la figura 5.2 es dona un espectre gamma d'alta resolució, corresponent a la mostra L en el qual hi ha assenyalats els pics corresponents al ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{137}Cs , ^{228}Ac i ^{40}K . La resta de mostres presenten espectres molt semblants al representat a la fig. 5.2

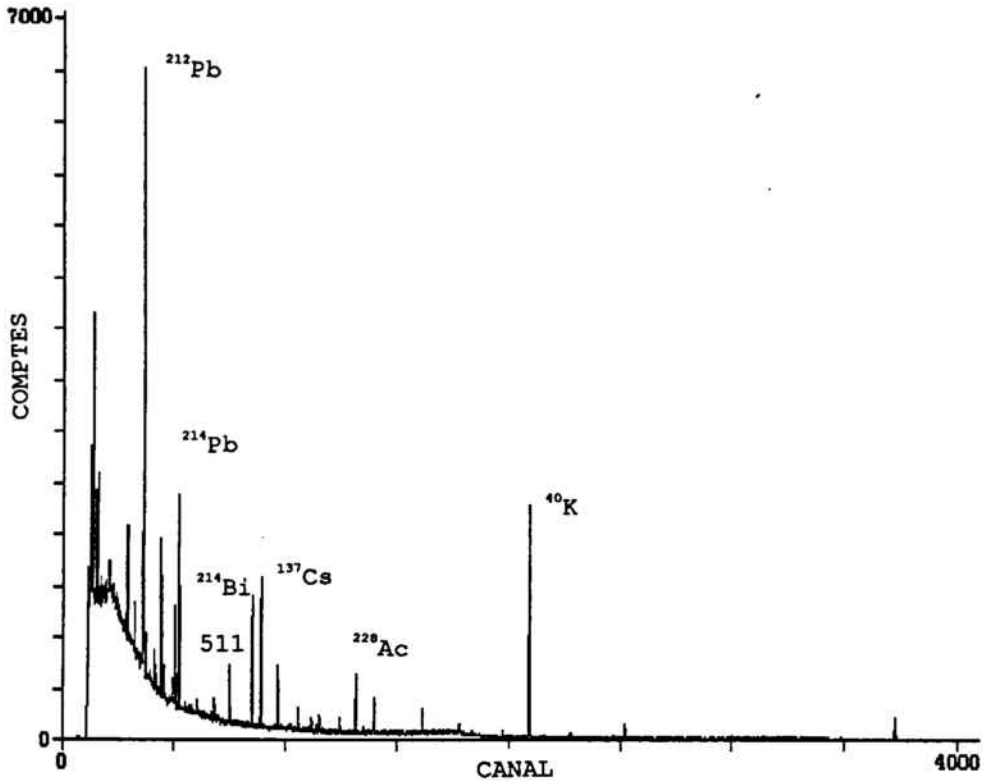


Figura 5.2. Espectre gamma corresponent a la mostra de sediment del punt L.

Pel que fa als radionúclids artificials hom observa que el nivell del ^{137}Cs és fàcilment detectable en tots els punts, no així el ^{134}Cs el qual només ha estat detectat en tres dels punts mesurats. L'absència de ^{134}Cs és senyal de l'escasa influència que l'accident de Txernòbil ha tingut en aquesta zona del Mediterrani, ja que la emissió procedent d'aquest accident presentava en el moment de l'emissió una relació $^{137}\text{Cs} / ^{134}\text{Cs}$ de 2. La no presència de ^{134}Cs en la majoria dels punts de mostreig fa eliminar l'accident de la central nuclear de Txernòbil com

a font de pol.lució, i permet atribuir el ^{137}Cs present com procedent principalment de les proves nuclears fetes a l'atmosfera fins a la dècada dels anys seixanta. Els valors de ^{137}Cs oscil·len entre 1.6 Bq/Kg de sediment sec, per punts amb un percentatge de sorra elevat, fins a 10 Bq/Kg de sediment sec. Aquest valors estan dins de l'interval trobat per altres autors (8,9,10) en aquesta zona de la Mediterrània abans de l'accident de Txernòbil i per tant no fan pensar en l'existència de cap altra font de pol.lució d'aquest radionúclid en aquesta zona que la del "fallout" abans esmentat. A la figura 5.3 hom representa l'activitat del ^{137}Cs pels diferents punts mesurats, observant molt poca variació d'uns punts als altres i l'absència de cap màxim fins i tot a la desembocadura del riu Besòs (punt 27).

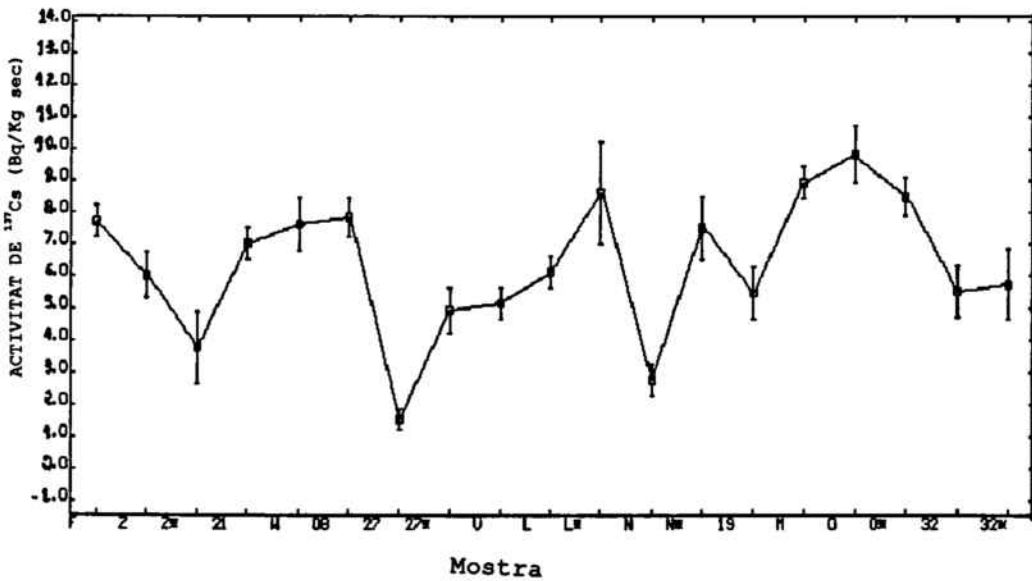


Figura 5.3. Activitat de ^{137}Cs pels diferents punts de la presa de mostra.

A les taules, tal com s'ha indicat anteriorment abans, els asteriscs fan referència a les mostres preses en la segona campanya.

Pot observar-se que en el cas dels punts de mostreig 27 i N hi ha una gran diferència entre ambdues campanyes. Aixó ha de relacionar-se amb els petits canvis de posició i de profunditat existents en els punts de mostreig considerats idèntics, i en la variabilitat dels sediments, la qual cosa comporta canvis en llur composició. En la primera campanya les mostres varen prendre's en punts que tenien un baix contingut en matèria orgànica i un aspecte sorrenc, mentre que en la segona campanya l'aspecte de les mostres 27* i N* era fangós, i el percentatge de matèria orgànica havia augmentat sensiblement.

A les figures 5.4, 5.5, 5.6 hom pot observar que hi ha una clara correlació entre el contingut de ^{137}Cs i el percentatge de matèria orgànica en les mostres preses a la zona 1, zona 2 i zona 3, amb uns coeficients de correlació de 0.84, 0.91 i 0.82 respectivament.

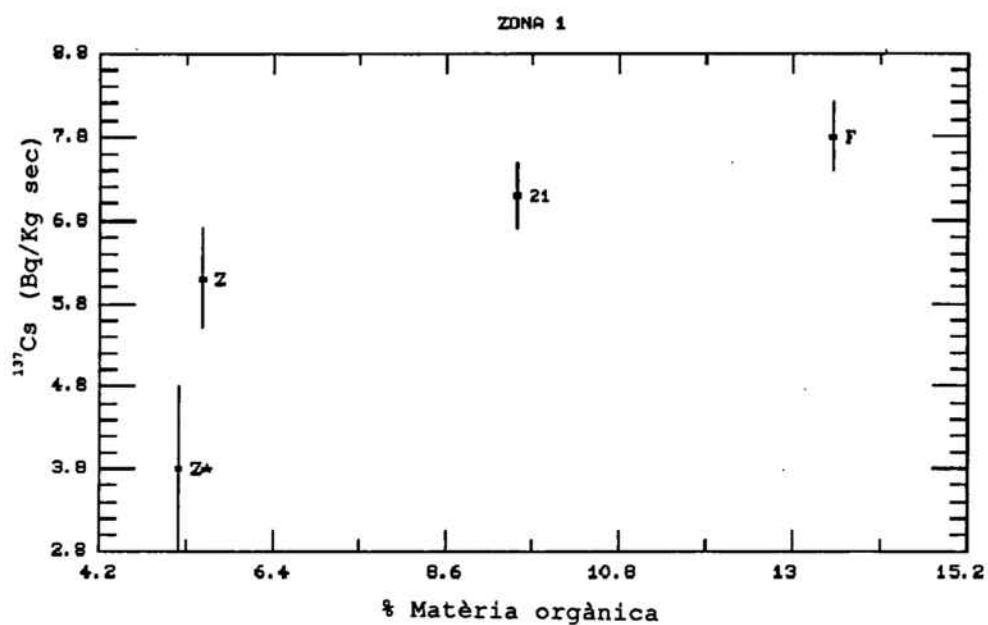


Figura 5.4. Correlació entre el ^{137}Cs i el % de materia orgànica en la zona 1.

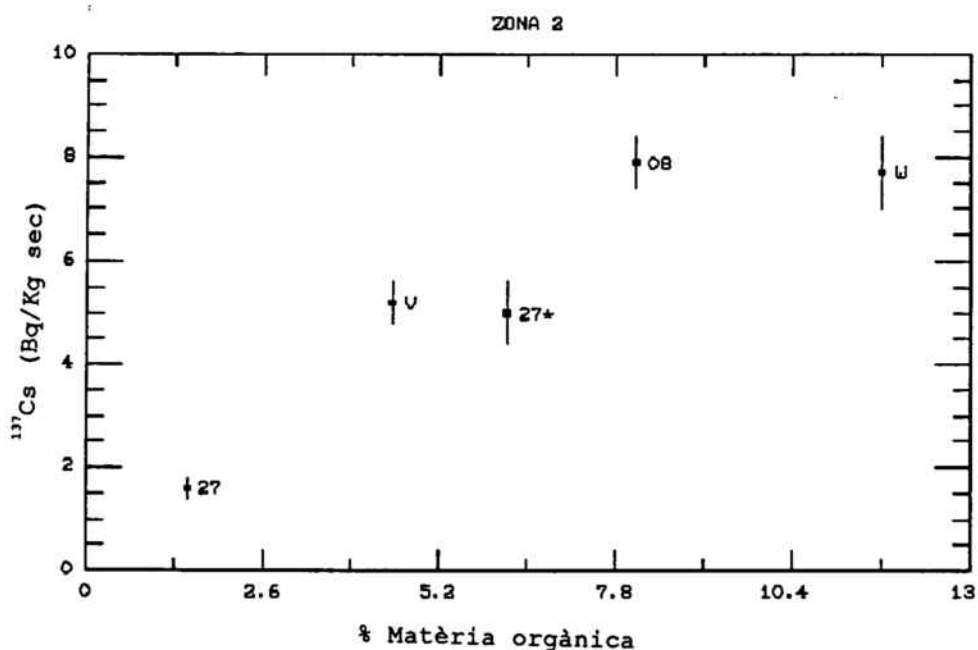


Figura 5.5. Correlació entre el ^{137}Cs i el % de materia orgànica en la zona 2.

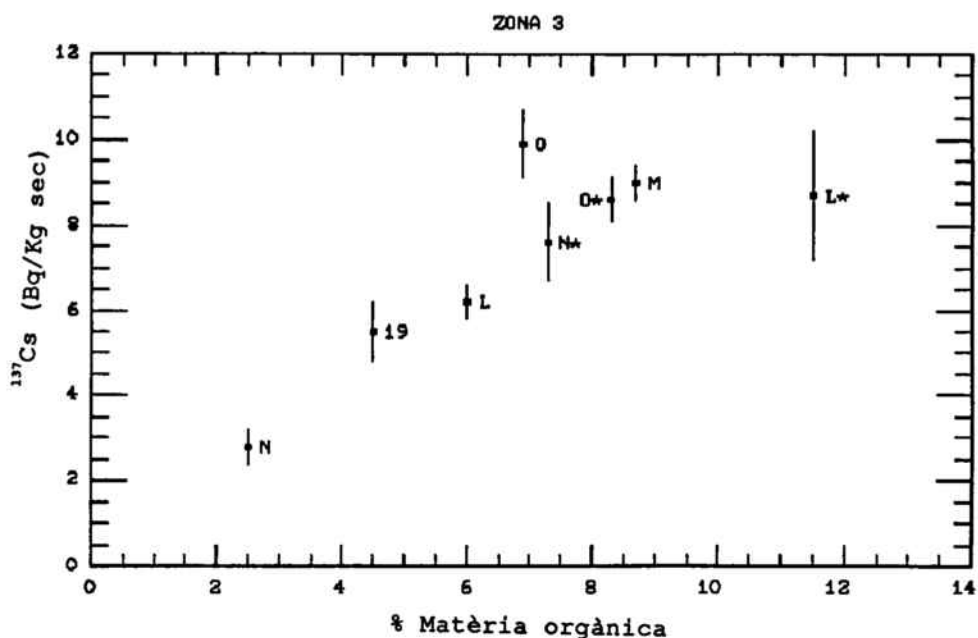


Figura 5.6. Correlació entre el ¹³⁷Cs i el % de matèria orgànica en la zona 3.

A la figura 5.7 hom mostra la correlació del contingut ¹³⁷Cs i el % de matèria orgànica de les tres zones de presa de mostra. El valor del coeficient de correlació en aquest cas es de 0.77.

Aquest tipus de correlació és el mateix que ja ha estat també observat en el capítol anterior en els estudis realitzats amb mostres de sòls. Hi ha autors (11) que observen que molts radionúclids són fàcilment absorbits per la matèria orgànica continguda en els sediments, degut a la seva capacitat de bescanvi iònic i de

complexació. Altres autors (12,13) afirmen que el ^{137}Cs es fixat, tant pels sòls com pels sediments, especialment per les partícules d'argil la.

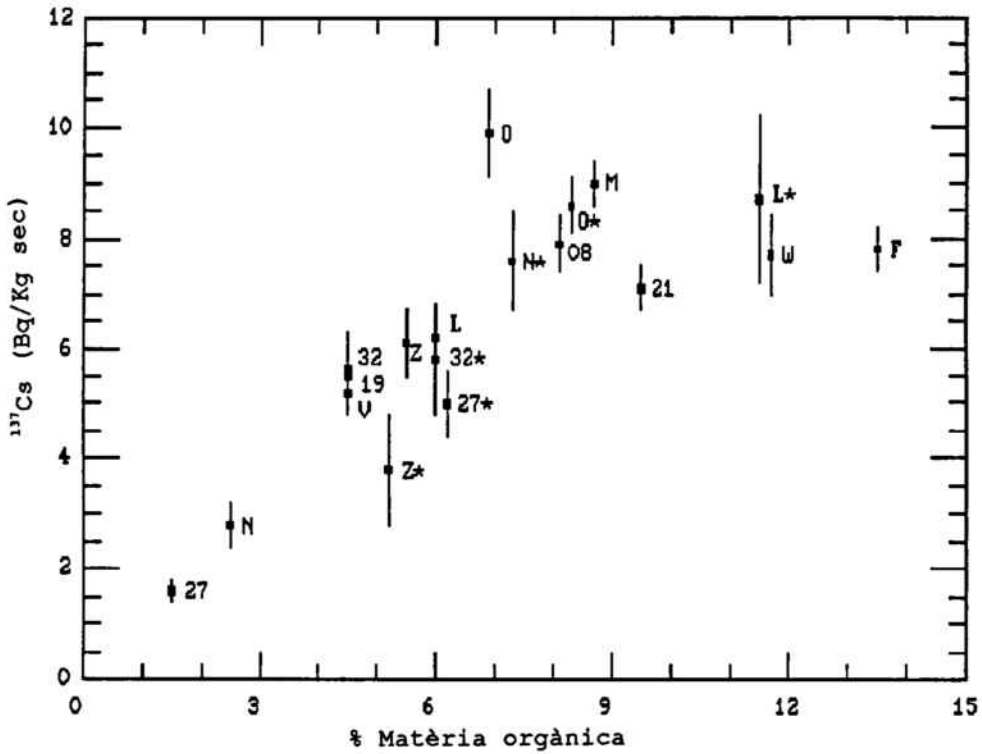


Figura 5.7. Correlació entre el ^{137}Cs i el % de matèria orgànica de les tres zones de presa de mostra.

A les taules 5.4 i 5.6 on hom dóna els valors d'activitat i el % de matèria orgànica dels perfils realitzats, tant pel que fa al nivell de base (punt 32) com pels punts V, O i M. Hom observa que els radionúclids naturals presenten una activitat que es manté constant amb la fondària. El ^{137}Cs presenta un comportament molt variable: en el punt

corresponent al nivell de fons, punt 32', l'activitat del ^{137}Cs disminueix amb la fondària tal com calia esperar; en el punt O hom observa una lleugera major activitat en els 2 primers cm; en tant que en els punts V , 32 i M hi ha un lleuger augment de l'activitat amb la fondària. En qualsevol cas les variacions són poc importants. A la figura 5.8 hom representa l'activitat del ^{137}Cs i el % de matèria orgànica les mostres en les quals s'ha estudiat els perfils de profunditat.

En ella hom constata aquest comportament irregular la qual cosa és pròpia de zones costaneres. Altres autors (14) han observat comportaments similars. Aquest comportament és paral·lel al que presenta el contingut de matèria orgànica en aquests punts. En el punt M s'observa un comportament diferent, doncs l'activitat es manté constant malgrat el lleuger decreixement del contingut en matèria orgànica amb la fondària, tal com es pot apreciar en les figures 5.9 i 5.10 on hom mostra l'activitat del ^{137}Cs i el % de matèria orgànica, respectivament, dels punts de presa de mostra on hom va dur a terme l'estudi dels perfils.

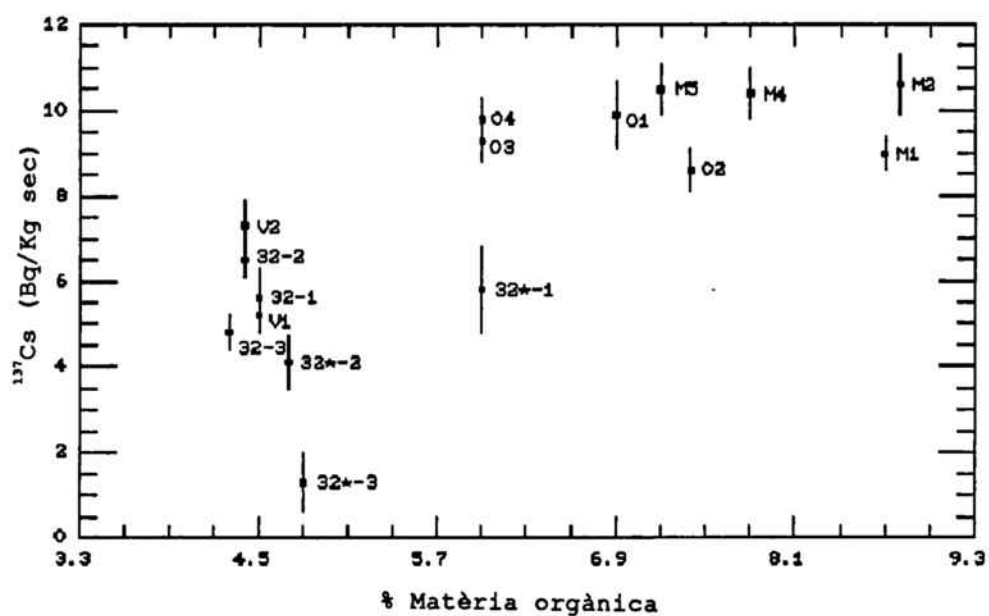


Figura 5.8. Activitat de ¹³⁷Cs i % de matèria orgànica en les mostres de l'estudi dels perfils.

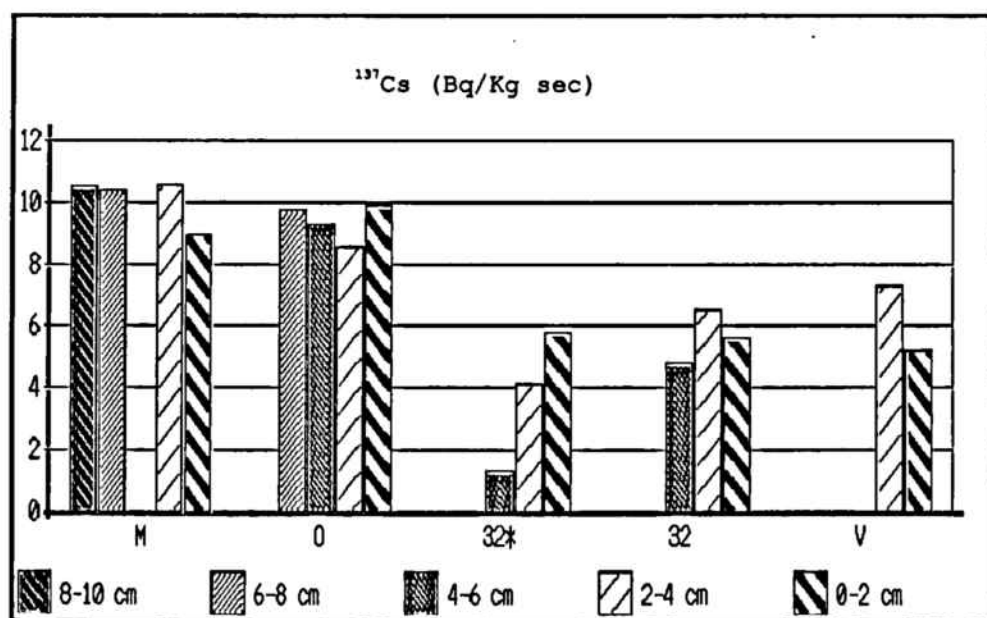


Figura 5.9. Activitat de ¹³⁷Cs en els perfils.

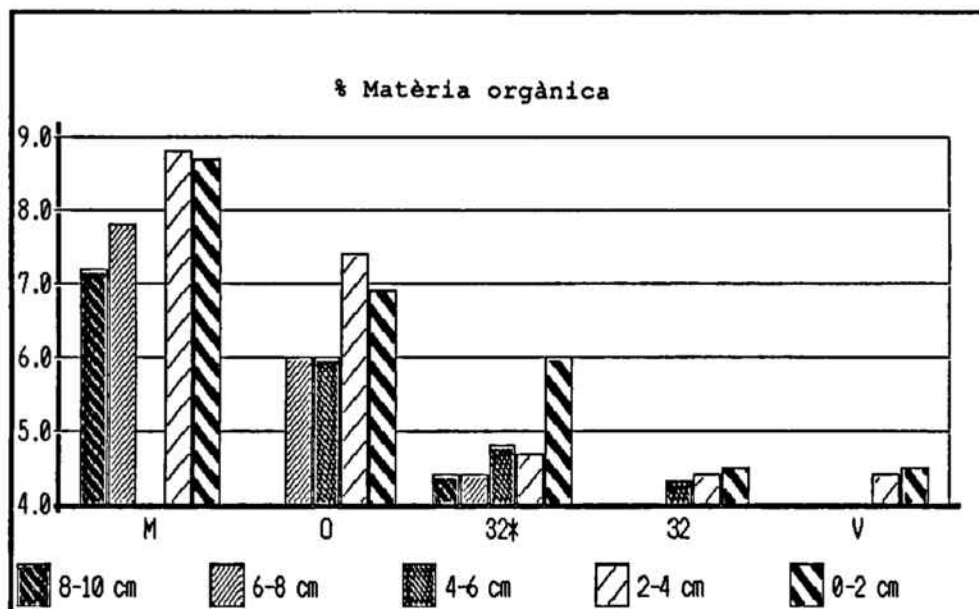


Figura 5.10. % de matèria orgànica en els perfils.

No s'ha efectuat cap estudi del perfil dins de la zona 1 ja que l'elevada velocitat de sedimentació per causa de les aportacions del emissari no feia preveure cap canvi de composició amb la fondària. Aquest comportament tan variable pel que fa al contingut en ^{137}Cs no permet deduir cap conclusió relativa a la possible velocitat de sedimentació.

Per tal d'estudiar el possible impacte de l'emissari (zona 1) i del riu Besós (zona 2) en la zona costanera (zona 3), hom ha intentat diferenciar les tres zones definides en el projecte SPIO fent una correlació entre les diverses variables per intentar delimitar les zones d'influència. Hom ha triat com a variables el ^{137}Cs d'origen antropogènic,

i l' ^{228}Ac d'origen natural. A la figura 5.11 hom representa en els tres eixos de coordenades els valors de l'activitat dels dos radionúclids considerats així com els valors del percentatge de matèria orgànica per totes les mostres estudiades.

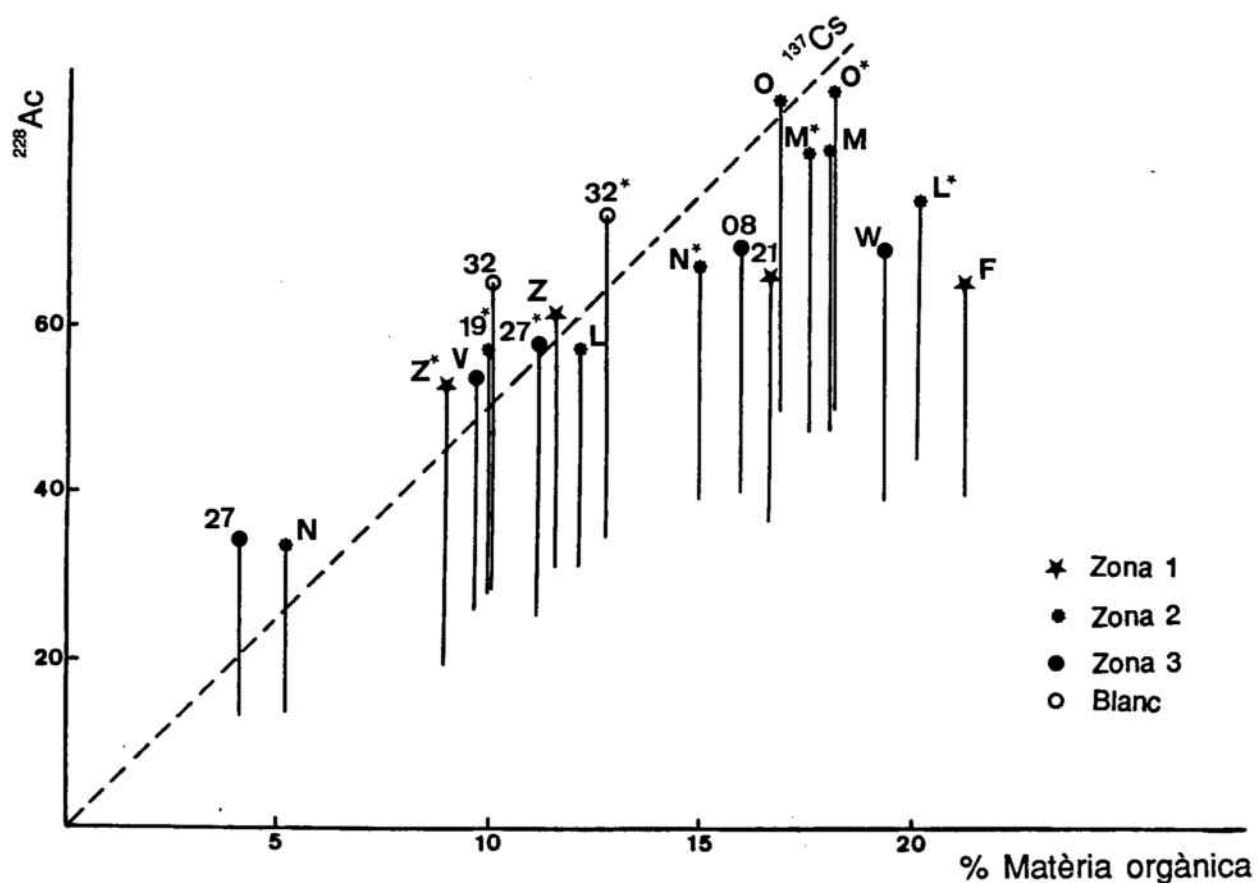


Figura 5.11. Representació gràfica dels punts de presa de mostra en funció de l'activitat natural, l'activitat artificial i del % de matèria orgànica.

Hom observa la formació de tres grups: el primer grup format pels punts 27 i N, els més sorrencs i amb un baix contingut en matèria orgànica; el segon format per punts pertanyents a les tres zones estudiades així com al nivell de base, en aquests grup hom hi troba el punt Z pertanyent a la zona 1, els punts V* i 27* de la segona campanya pertanyents a la zona 2 i els punts 19* i L corresponents a la zona 3. El tercer grup que és el més ampli també està format per punts corresponents a les tres zones, així en formen part el punt F que és el més proper a la desembocadura del riu Besós i el punt 21 ambdós pertanyents a la zona 1, els punts 08 i W de la zona 2 i la majoria dels punts corresponents a la zona costanera (zona 3) inclòs el punt L* el qual pertanyia al segon grup en la primera campanya de presa de mostres.

Per a confirmar aquests resultats vàrem aplicar a les mateixes variables l'anàlisi de reconeixement de models basada en el mètode de Ward el qual computa les similituds segons l'expressió:

$$S_{ij} = 1 - (D_{ij} / D_{MAX})$$

on D és la distància euclidiana i agrupa les dues dades més similars. El procediment es va dur a terme emprant el programa CLUSTAN (15).

A la figura 5.12 hom ha representat el dendograma que resulta de

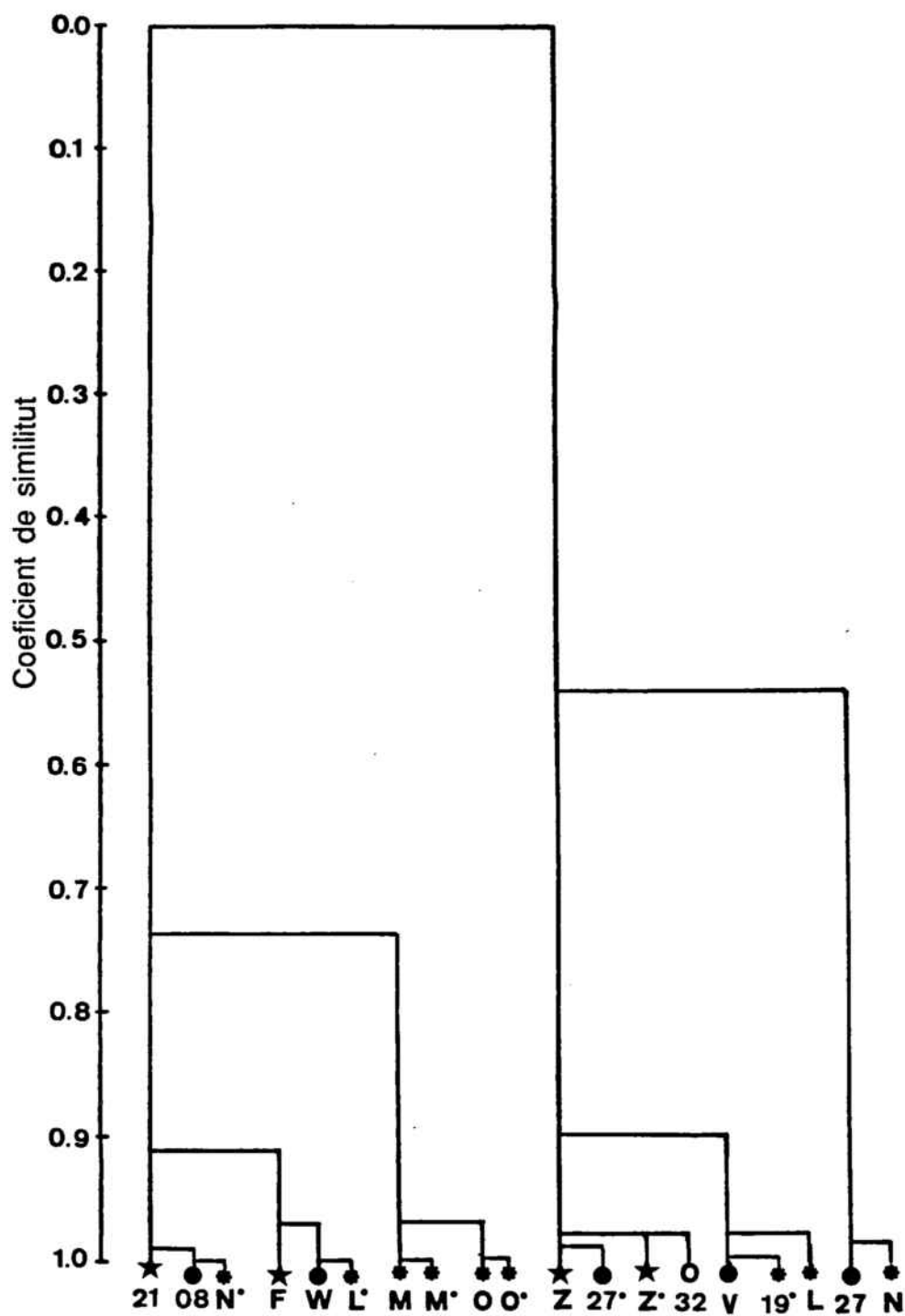


Figura 5.12. Dendrograma corresponent a l'anàlisi de reconeixement de models amb les variables ^{137}Cs , ^{228}Ac i % de matèria orgànica.

l'aplicació d'aquest mètode. Els resultats confirmen i amplien les conclusions a les quals havíem arribat en la representació tridimensional. En el dendograma s'observa la formació de dos grups o models formats per mostres procedents de les tres zones definides en el projecte. En el primer grup o model hi ha una clara diferència entre els punts M i O pertanyents a la zona 3, dels altres punts del mateix model. En el segon grup o model els punts N i 27 de la primera campanya són clarament diferents dels N* i 27* de la segona, els quals pertanyen al primer model. Un comportament similar és el que s'observa pel punt L. Aixó demostra que els punts propers a la costa presenten una variació clara en llur composició.

5.6 CONCLUSIONS.

Dels estudis de radioactivitat realitzats en mostres de sediments de la costa nord de Barcelona hom pot deduir dues conclusions:

1) No hi cap pol.lució específica per radionúclids emissors gamma de vida llarga en la zona estudiada. La radioactivitat és baixa i, o bé té origen natural (^{40}K , ^{212}Pb , ^{214}Pb , ^{212}Bi , ^{214}Bi , ^{228}Ac ,...), o bé té origen en les proves nuclears a l'atmosfera efectuades a començament dels anys seixanta (^{137}Cs).

2) Els valors de l'activitat no permeten marcar cap diferència entre les zones prèviament definides.

5.7 BIBLIOGRAFIA.

(1) Eisenbud, M., "Environmental Radioactivity. From Natural, Industrial and Military Sources". Academic Press, Inc. (1987), 119. ISBN 0-12-235153-3.

(2) Roth, E. and Poty, B. "Méthodes de datation par les phénomènes nucléaires naturels. Applications". Ed. Masson S.A. pp. 524, (1985). ISSN: 0294-0248, ISBN: 2-225-80674-8.

(3) Ortega, X., Rosell, J.L. i Vallès, I. "The radioactivity of the sands of the Catalan Littoral". International Conference on Environmental Radioactivity in the Mediterranean area. Sección Catalana de la Sociedad Nuclear Española. pp. 17-33. Barcelona, Mayo 1988.

(4) Gilat, E., Laichter, Y. and Shafrir, N.H. " Behaviour of ^{137}Cs in the Marine Environment" IAEA-SH-198/18 :63.

(5) Delfanti, R. y Papucci, C. "Characteristics of Chernobyl Fallout in the Italian Coastal Marine Environment". International Conference on Environmental Radioactivity in the Mediterranean area. Sección Catalana de la Sociedad Nuclear Española. pp. 489. Barcelona, Mayo 1988.

(6) Holm, E., Fukai, R. and Whitehead, N.E. "Radiocaesium and

Transuranium Elements in the Mediterranean Sea: Sources, Inventories and Environmental Levels". International Conference on Environmental Radioactivity in the Mediterranean area. Sección Catalana de la Sociedad Nuclear Española. pp. 601. Barcelona, Mayo 1988.

(7) Mitchell, P.I., Vidal-Quadras, A., Sánchez J.A. and Font, J.L. "Alteración de los niveles de cesio radioactivo en aguas superficiales del Atlántico nororiental tras el accidente de Chernobil". XIII Reunión Anual de la SNE. La Toja, 1987.

(8) Irun, I., Moya, J., Rubio, G. i Marugan, I. "Valores de radioactividad ambiental de fondo en la zona Mediterranea de Tarragona". Conferencia Internacional sobre Radioactividad Ambiental en el Area del Mediterraneo. Sección Catalana de la Sociedad Nuclear Española. pp. 325-336. Barcelona, 1988.

(9) Toccafondi, G., Queirazza, G., Antonucci, L., Bonfanti, G. y Ciceri, G. "Preoperational environmental studies around the Italian Montalto Nuclear Power Plant: Background level and previsional distribution of radioactivity". Conferencia Internacional sobre Radioactividad Ambiental en el Area del Mediterraneo. Sección Catalana de la Sociedad Nuclear Española. pp. 337-358. Barcelona, 1988.

(10) Delfanti, R., Fiore, V., Lavarello, O. y Papucci, C.

"Environmental radioactivity along the Italian coasts".

Conferencia Internacional sobre Radioactividad Ambiental en el Area del Mediterraneo. Sección Catalana de la Sociedad Nuclear Española. pp. 371-386. Barcelona, 1988.

(11) Rashid, N.A. Geochemistry of Marine Humic Components. Springer Verlag, New York, USA. (1985).

(12) Francis, C.W. and Brinkley, F.S. Nature, 260, 511 (1976).

(13) Guéguéniat, P. et Carbonnie, M. "Contamination de sédiments marins par le ^{137}Cs en fonction de leur composition en argiles et en carbonates." Rapp. omm. int. Mer Médit., 23, pp. 133-135, (1976).

(14) Aarkrog, A., Boelskifte, S., Botter-Jensen, L., Dahlgaard, H., Heinz Hansen and Nielsen, S.P., RISO-R-509 Riso National Laboratory, DK-4000 Roskilde, Denmark, June 1984.

(15) Wishart, D. (1982) "CLUSTAN User Manual". Program Library Unit. Edinburgh University. U.K.

