

UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID
FACULTAD DE CIENCIAS QUÍMICAS
Departamento de Ciencia de los Materiales e Ingeniería
Metalúrgica



TESIS DOCTORAL

**Caracterización radiológica del área afectada por el accidente de
Palomares: evolución histórica y situación actual**

MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTOR

PRESENTADA POR

José Carlos Sáez Vergara

Director

Javier Quiñones Díez

Madrid, 2017



Caracterización radiológica del área afectada por el accidente de Palomares: Evolución histórica y situación actual

TESIS DOCTORAL

José Carlos Sáez Vergara

Madrid, diciembre de 2015



MINISTERIO
DE ECONOMÍA
Y COMPETITIVIDAD

Ciemat

Centro de Investigaciones
Energéticas, Medioambientales
y Tecnológicas



Caracterización radiológica del área afectada por el accidente de Palomares: Evolución histórica y situación actual

TESIS DOCTORAL

José Carlos Sáez Vergara

Director:
Dr. Javier Quiñones Díez

Madrid, diciembre de 2015



GOBIERNO
DE ESPAÑA

MINISTERIO
DE ECONOMÍA
Y COMPETITIVIDAD

Ciemat

Centro de Investigaciones
Energéticas, Medioambientales
y Tecnológicas

JAVIER QUIÑONES DÍEZ, Subdirector General de Seguridad y Mejora de las Instalaciones del Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT) y hasta el 2013 Profesor Asociado del Departamento de Ciencia de los Materiales e Ingeniería Metalúrgica de la Facultad de Ciencias Químicas de la Universidad Complutense de Madrid

C E R T I F I C A :

Que el presente trabajo de investigación titulado "Caracterización radiológica del área afectada por el accidente de Palomares: evolución histórica y situación actual", constituye la memoria que presenta José Carlos Sáez Vergara, para optar al Grado de Doctor en Ciencias Químicas y que ha sido realizada en el Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT).

Para que así conste lo firmo en Madrid, a uno de diciembre de 2015.


Fdo. Javier Quiñones Díez



A mis padres, Carlos y Consuelo, mi hermana Miriam y su marido José María, mis suegros, Vicente e Isabel, mi esposa Ana Isabel y mi hijo Carlos.

AGRADECIMIENTOS

Mis agradecimientos deben iniciarse con el CIEMAT como organismo público de investigación por su compromiso institucional, científico y económico con Palomares, debiendo mencionar a sus Directores Generales durante el periodo de desarrollo de este trabajo, el Dr. Juan Antonio Rubio Rodríguez y el Prof. Dr. Cayetano López Martínez, y, en especial, a la Prof. Dra. Teresa Mendizábal Aracama, Directora del Departamento de Medioambiente y Secretaria General del CIEMAT, cuya implicación a todos los niveles en este trabajo me ha servido de estímulo constante.

Mi sincero y profundo agradecimiento al Dr. Javier Quiñones Díez, Director de esta Tesis Doctoral, por sus acertadas opiniones y nuevos puntos de vista buscando siempre la excelencia, así como su eficaz labor de dirección y generosa dedicación en la elaboración de esta memoria.

Mi reconocimiento a Carlos Sancho, por atender mis propuestas y facilitar los medios para obtener los resultados de este trabajo.

Mi gratitud al Dr. Gabriel Piña por sus consejos y colaboración, que hago extensivo al personal de su grupo de trabajo que me ayudó a completar a tiempo la larga secuencia de medidas en laboratorio.

A Carlos Pérez, Enrique Correa, David Burgos, Miriam Herbella y Dr. Antonio Aragón por las discusiones técnicas y científicas que han permitido alcanzar los objetivos establecidos.

Mi gratitud a las personas que tanto ayudaron en las medidas sobre el terreno y en el análisis de las numerosas muestras obtenidas: José Luis Girón, Javier de Orte, Joaquín Botas, Vanessa Calzada, Sofía Aguilar, Gerard Casanova, Ana Vico, Jorge Berenguer y Luis Sánchez Boyer.

A Dra. Asunción Espinosa, Dra. Alicia Álvarez, Dra. Catalina Gascó, Candelas Gómez y José Antonio Carroza por la valiosa información que me proporcionaron y por sus sugerencias para la elaboración del texto.

A los vecinos de Palomares por su colaboración y comprensión durante la realización de las campañas de medida. Siendo excepcionales el emplazamiento, las tierras y su clima, lo mejor de Palomares es, con diferencia, su gente.

Y especialmente a Diego Moreno, mi amigo, sin cuya colaboración para organizar localmente todas las actividades en Palomares este trabajo no hubiera sido posible.

Por último, quedo en deuda para siempre con mi familia, a quien tanto tiempo he robado y que siempre me han apoyado y animado a concluir este trabajo.

Índice

Resumen	xiii
Summary	xv
Introduction	xv
Materials and methods	xvi
Results and discussion.....	xix
Conclusions.....	xxiv
Listado de acrónimos	xxv
0. Objetivos	1
1. Introducción	3
1.1 Funcionamiento de las armas termonucleares	4
1.2 Propiedades de los Actinoides	6
1.2.1 Plutonio	9
1.2.2 Uranio.....	14
1.2.3 Americio.....	15
1.2.4 Transuránidos dispersos en el medioambiente	15
1.3 El accidente de Palomares	16
1.3.1 Descripción del escenario	24
1.3.2 Forma fisicoquímica de la contaminación	26
1.3.3 Fracciones y relaciones isotópicas características.....	29
1.4 Caracterización radiológica de las zonas	33
1.4.1 Criterios radiológicos para la restricción de uso de los terrenos	34
1.4.2 Plan de medidas.....	37
2. Materiales y métodos.....	39
2.1 Análisis de espectrometría γ	39
2.2 Selección de los equipos de medida	41
2.3 Medidas dinámicas: sistema DINARAD	44
2.4 Medidas estáticas y recogida de muestras de suelo superficial y en profundidad	47
2.4.1 Sistema ESTARAD	47
2.4.2 Sistema de espectrometría γ in situ de alta resolución	49
2.4.3 Sondeos.....	49
2.5 Medida de la actividad en muestras de tierras	50
2.6 Distribuciones en función del tamaño de partícula	52
2.7 Segregación de tierras contaminadas en muestras a media escala.....	55
3. Resultados	59
3.1 Modelación termodinámica	59
3.1.1 Pu	59
3.1.2 Am	63
3.2 Calibración y puesta a punto de equipos.....	64

3.2.1	Eficiencia del término fuente en medidas dinámicas.....	64
3.2.2	Eficiencia del instrumento FIDLER.....	67
3.2.3	Resolución espacial en las medidas dinámicas con FIDLER.....	69
3.2.4	Medidas de actividad en muestras de tierras.....	70
3.2.5	Calibración matemática en eficiencia de los HP-Ge.....	76
3.2.6	Correlación entre los resultados de las medidas experimentales.....	79
3.2.7	Calibración del Mini-FIDLER.....	81
3.2.8	Calibración de la eficiencia del sistema Tolva-revólver.....	83
3.3	Caracterización radiológica del suelo superficial (0-15 cm).....	84
3.3.1	Caracterización extensiva del suelo superficial.....	86
3.3.2	Caracterización intensiva del suelo superficial.....	90
3.3.3	Medidas estáticas.....	94
3.3.4	Distribución de la actividad de ^{241}Am en el suelo superficial (0-15 cm).....	102
3.4	Caracterización radiológica del subsuelo (0.2 – 5 m).....	110
3.5	Análisis de los resultados de la caracterización radiológica.....	122
3.6	Distribución de la masa y actividad de ^{241}Am en función del tamaño de partícula.....	128
3.7	Resultados iniciales de la segregación de muestras a media escala.....	136
3.8	Evaluación de las superficies y volúmenes de los terrenos contaminados.....	142
4.	Conclusiones.....	145
5.	Líneas futuras de investigación.....	147
6.	Referencias.....	149

Índice de tablas

Tabla I: Propiedades nucleares de los isótopos de U, Pu y Am empleados en las armas termonucleares [11] [16].	8
Tabla II: Principales radiaciones ionizantes emitidas por los isótopos de U, Pu y Am empleados en las armas termonucleares. Los intervalos de energía de rayos X se indican como (RX) [17].	9
Tabla III: Fracciones isotópicas expresadas en porcentaje de la masa total [23] y de la actividad total para el Pu producido en reactores nucleares en función del grado de quemado.	11
Tabla IV: Composiciones isotópicas en masa y actividad del Uranio.	14
Tabla V: Actividad de varios radionucleidos liberada en el accidente de Chernobyl (1986) y las pruebas nucleares en la atmósfera (1945-1989) [29].	16
Tabla VI: Estimación del área inicialmente contaminada por ^{239}Pu [34] [35].	21
Tabla VII: Criterios y resultado de las acciones de remedio realizadas en Palomares por la FA-EEUU entre el 22 de enero y el 10 de marzo de 1966 [1] [2].	23
Tabla VIII: Valores de las razones isotópicas de actividad, indicando el año de referencia para el que fueron calculadas y la metodología de análisis.	31
Tabla IX: Estimación de las relaciones isotópicas de actividad relativas a ^{239}Pu en el momento del accidente y su evolución. Las incertidumbres se expresan con un nivel de confianza del 95 %.	32
Tabla X: Valores de las razones atómicas, indicando el año de referencia en la que se realizaron las medidas.	33
Tabla XI: Estimación de las razones isotópicas de actividad relativa a ^{241}Am en el momento del accidente y su evolución.	36
Tabla XII: Eficiencias y fondos típicos para 60 keV en los detectores NaI:TI, FIDLER y HP-Ge. Las incertidumbres relativas ($k = 2$) son inferiores al 1 %. En las columnas de la derecha se muestran las actividades mínimas detectables para varios tiempos de recuento.	44
Tabla XIII: Descripción de los datos durante la medida con el sistema DINARAD [91].	46
Tabla XIV: Reacciones de oxidación del Pu metálico.	61
Tabla XV: Resultados de la calibración instrumental de dos FIDLER y cálculo de la eficiencia total para el modelo asumido de la contaminación de los suelos en Palomares. Las incertidumbres se expresan con un intervalo de confianza del 95 % ($k=2$).	68
Tabla XVI: Superficie caracterizada en m^2 para un término fuente homogéneo de 15 cm de espesor y 100 cm de radio.	70
Tabla XVII: Concentración de actividad de ^{241}Am mínima detectable (CAMD), en $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.	70
Tabla XVIII: Fuentes radiactivas certificadas para la calibración en eficiencias de los sistemas de espectrometría γ usados en la determinación de la [^{241}Am] en muestras inalteradas de suelos superficiales y sondeos. Las incertidumbres se expresan con un intervalo de confianza del 95 % ($k = 2$).	71

Tabla XIX: Resultados del análisis de regresión lineal y modelos potenciales para la relación entre el cociente I/S y la eficiencia a 59.5 keV de los detectores HP Ge y FIDLER.	74
Tabla XX: Comparación de las eficiencias a 59.5 keV experimentales y calculadas con ISOCS para diversas configuraciones de medida de muestras inalteradas de tierras.....	78
Tabla XXI Resultados de la calibración instrumental de un Mini-FIDLER y cálculo de la eficiencia total para el modelo del testigo de los sondeos practicados en los suelos de Palomares. Las incertidumbres se expresan con un intervalo de confianza del 95 % (k = 2).....	82
Tabla XXII: Origen geográfico y [²⁴¹ Am] de los patrones de referencia de 12 dm ³ utilizados en la calibración en eficiencia de los FIDLER de la Tolva-Revólver.....	84
Tabla XXIII: Estadística descriptiva de los resultados de las medidas dinámicas de la [²⁴¹ Am] en el suelo superficial de Palomares.	91
Tabla XXIV: Estimación de las áreas contaminadas en Palomares de acuerdo a los resultados obtenidos en las caracterizaciones radiológicas dinámicas del suelo superficial. La última columna muestra los valores máximos de [²⁴¹ Am] en cada zona. Las incertidumbres se han calculado con un nivel de confianza del 95 %.	91
Tabla XXV: Estimación de las áreas contaminadas en Palomares de acuerdo a las medidas de la caracterización estática del suelo superficial. La última columna muestra los valores máximos de [²⁴¹ Am] en cada zona y su incertidumbre con un nivel de confianza del 95%.	97
Tabla XXVI: Estadísticos de los resultados de las medidas de tasa de dosis en Palomares.	99
Tabla XXVII: Concentración de actividad determinadas con SEGIS en Palomares y estimación de la tasa de dosis a 1 m que originan.	101
Tabla XXVIII: Evaluación del volumen de tierras contaminadas en el subsuelo (0.2 – 6 m) de Palomares a partir de los sondeos practicados en las zonas 2, 3 y 6.	122
Tabla XXIX Evaluación del volumen de tierras contaminadas en Palomares entre 0 y 5 m de profundidad para cada uno de los criterios de restricción de uso establecidos por el CSN.	123
Tabla XXX Estimación del volumen y de la actividad total de ²⁴¹ Am de las tierras contaminadas con [²⁴¹ Am] > 1 Bq·g ⁻¹ en Palomares.	124
Tabla XXXI: Descripción de las parcelas contaminadas por el accidente de 1966.....	125
Tabla XXXII: Medianas y cuartiles (primero, tercero) de la [²⁴¹ Am] en cada zona en función de la profundidad y los intervalos de restricción de uso establecidos por el CSN.	127
Tabla XXXIII: Estimación de las actividades de ²⁴¹ Am y ²³⁹ Pu y de la masa de ²³⁹ Pu en las tierras contaminadas en Palomares entre 0 y 5 m de profundidad.	128
Tabla XXXIV: Resultados del estudio de granulometría para estudiar la eficacia del tamizado en seco en el tratamiento de las tierras contaminadas de Palomares.....	135
Tabla XXXV: Evaluación a la fecha de este memoria de las áreas y volúmenes contaminados en Palomares como consecuencia del accidente de 1966.....	143

Índice de figuras

Figura 1: Configuración Teller-Ulam de una bomba termonuclear en 2 etapas (fisión y fusión) [11].	4
Figura 2: Comparación de los radios atómicos de Wigner-Seitz [14](Izquierda) y puntos de fusión (Derecha) para los lantanoides (4f), los metales de transición (5d) y los actinoides (5f).	7
Figura 3: Diagramas de fase binarios de los actinoides [14] [15].	8
Figura 4: Evolución de las propiedades del Pu en función de sus cambios alotrópicos [25]. En la figura de la derecha se han empleado distintas escalas para facilitar la comparación.	12
Figura 5: Diagrama binario de fases en equilibrio del Pu-Ga [26] (izquierda) y evolución de la dilatación del Pu (puro) y del Pu- 3 % _a Ga (derecha).	13
Figura 6: Potenciales redox entre los distintos estados de oxidación del Pu en medio ácido [27].	13
Figura 7: Rutas de la operación Chrome Dome sobre España. El círculo indica la entrada de los vuelos de regreso por la Sierra Almagrera junto a la desembocadura del río Almanzora (Cuevas del Almanzora, Almería).	17
Figura 8: Dibujo esquemático que describe el accidente del 17 de enero de 1966 sobre Palomares (Cuevas del Almanzora, Almería) [32].	19
Figura 9: Localización del punto de separación de las bombas del avión, los puntos de impacto de las bombas (W-1, W-2, W-3, placa de la W-4) y otros restos (B-52 y KC-135) sobre una fotografía de la zona de 1956 [33].	19
Figura 10, Izquierda: Monitor de centelleo para la detección de contaminación α Eberline PAC-1S. Derecha: Detalle del reconocimiento radiológico efectuado en direcciones radiales desde el punto de impacto de la bomba nº 2 [2].	20
Figura 11: 'Línea Cero' de contaminación establecida por la FA-EEUU el 11 de febrero de 1966. Superior: Datos expresados en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ y muestra los puntos de impacto de varios restos de gran tamaño como las cabinas, motores, tren de aterrizaje y la cola del B-52 [2]. Inferior: Datos expresados en $\text{kBq}\cdot\text{m}^{-2}$ que muestra la definición de las zonas 2, 3, 5 y 6, con sus estaciones de muestreo empleadas posteriormente en el seguimiento radiológico.	22
Figura 12, Izquierda: Carga de los bidones con material contaminado en la playa de Quitapellejos. En la esquina superior derecha se encuentra el Campamento Wilson. Derecha: Imagen de las bombas nº 1 (izquierda) y nº 4 (derecha) expuestas actualmente en el Museo Nacional de Ciencia e Historia Nuclear de Albuquerque (Nuevo México, EEUU).	23
Figura 13: Relaciones atómicas típicas para varias situaciones [55] [56] comparadas con el Pu grado arma y los resultados de las muestras de suelos de Palomares.	30
Figura 14: Relaciones isotópicas en muestras de Palomares. Las barras de error corresponden al 95 % de confianza (inapreciables para ^{238}Pu y ^{240}Pu). Las líneas indican la evolución de las relaciones isotópicas según la Tabla IX.	32
Figura 15: Evolución de las fracciones isotópicas en masa y actividad en muestras de Palomares.	33

Figura 16: Modelo gaussiano para un fotopico de espectrometría γ (Izquierda) y métodos diferenciales para determinar el centroide y la región de interés, RDI (Derecha)	40
Figura 17: Análisis de fotopicos de espectrometría γ , que incluye la definición de la región de interés, el cálculo del fondo continuo, el ajuste al modelo gaussiano y el cómputo del área neta N_A-N_F	40
Figura 18: Izquierda: Empleo de un FIDLER monocanal en una campaña de medidas puntuales en Palomares (posiblemente en los años 1980). Derecha: FIDLER con una electrónica digital multicanal conectada a un ordenador personal mediante un cable USB por el que se suministra la alta tensión al detector y se recibe la señal digitalizada.....	43
Figura 19: Comparación de los espectros obtenidos in situ con un detector FIDLER de 12.6 cm de diámetro y 0.166 mm de espesor, un detector de NaI:Tl de 7.62 cm de diámetro y 7.62 cm de longitud y un detector de Ge de alta pureza de 5.5 cm de diámetro y 5.8 cm de longitud. Izquierda: Fuente puntual de ^{241}Am de 0.5 MBq (los datos del Ge se han ampliado un factor 4). Derecha: Fondo ambiental de las medidas in situ sin colimación ni blindaje.	43
Figura 20: Componentes del sistema DINARAD para ser portado a mano por una persona (Arriba) o instalado en un carro adaptado para la medida en grandes superficies llanas (Abajo).	45
Figura 21: Realización de las medidas estáticas. Superior izquierda: Localización de los puntos de medida y muestreo con el programa ESTARAD. Superior derecha: Espectrometría γ in situ con el FIDLER. Inferior izquierda: Medida de la tasa de dosis y obtención de las muestras inalteradas de suelo. Inferior derecha: Muestras inalteradas de suelo superficial hasta 15 cm de profundidad.....	48
Figura 22: Sistema de espectrometría γ in situ (SEGIS) en una medida sobre los terrenos de Palomares.	49
Figura 23: Campaña de sondeos para determinar la profundidad de la contaminación: Realización del sondeo por rotación (Izquierda); Examen radiométrico del testigo obtenido (centro); Muestras representativas obtenidas mediante corte del testigo (derecha).....	50
Figura 24: Equipo y programa informático para la medida automática de hasta 8 muestras de tierras inalteradas de suelo superficial y sondeos con dos detectores FIDLER.....	51
Figura 25: Detectores de HP-Ge blindados empleados para la medida de muestras inalteradas de tierras.	51
Figura 26: Proceso para la medida de la actividad de ^{241}Am en muestras inalteradas y fracciones granulométrica de tierras de Palomares.....	52
Figura 27: Secado por evaporación y disgregación manual de las muestras.	53
Figura 28: Tamizado en seco de las muestras de suelo por inyección de aire, con detalle del ciclón en el recipiente de recogida de la fracción 'fina'.	53
Figura 29: Fracciones granulométricas obtenidas del tamizado en seco de una muestra y depositadas en cápsulas Petri.	54
Figura 30: Niveles experimentales de llenado de las cápsulas Petri con las distintas fracciones granulométricas y método de cálculo del volumen contenido.....	54
Figura 31: Obtención de las muestras (100-150 kg) para el estudio de segregación de tierras a escala media.	56

Figura 32. Izquierda: Equipo FALCON 5000®. Derecha: Medida de actividad en los recipientes de 12 dm ³ con el HP-Ge Detective de Ortec.	56
Figura 33: Prototipo registrado para patente [8] del dispositivo para la medida y segregación de tierras contaminadas por ²⁴¹ Am. Superior: Esquema y realización de la Tolva-Revólver. Inferior: Detalle de la disposición de los FIDLER y carga de una muestra de tierra en la geometría de medida.....	57
Figura 34: Programa de control y medida de la Tolva-revólver.	58
Figura 35: Secado de muestras en un recinto SAS.	58
Figura 36: Tamizadoras industriales FTL-0400 con 4 tamices montados en serie.....	58
Figura 37: Diagrama de fases en equilibrio Pu-O en el intervalo 58 - 68 % _a en O [113] [114].	60
Figura 38: La estructura cristalina de los óxidos de Pu: tipo fluorita del PuO ₂ (izquierda), hexagonal del Pu ₂ O ₃ (derecha) [115].	60
Figura 39: Oxidación y piroforicidad del Pu	60
Figura 40: Diagramas de Pourbaix para el Pu en disoluciones acuosas con composición típica del agua marina [122], asumiendo la presencia (izquierda) o ausencia de PuO ₂ (cr) (derecha). El área sombreada corresponde a los intervalos de variación encontrados en aguas naturales.	62
Figura 41: Diagrama de Pourbaix para el Am en disoluciones acuosas con composición típica del agua marina [122]. El área sombreada corresponde a los intervalos de variación encontrados en aguas naturales.	63
Figura 42: Configuración geométrica de un FIDLER para la medida sobre un suelo contaminado.....	64
Figura 43: Variación del flujo de fotones en el centro del FIDLER con el espesor (fila superior), el radio (fila intermedia) y el desplazamiento entre ejes (fila inferior) del término fuente para las alturas de medida de 5 cm (columna izquierda) y 10 cm (columna derecha). Las líneas suavizadas entre los puntos experimentales no expresan correlación entre las variables y solo pretenden facilitar la interpretación de las gráficas.	66
Figura 44: Autoabsorción de los fotones de 60 keV en función del espesor de una capa limpia del mismo suelo que recubre el término fuente.....	67
Figura 45: Eficiencia de un FIDLER para los fotones de 59.5 keV provenientes de una fuente puntual certificada de ²⁴¹ Am en función del desplazamiento respecto al eje del detector y para varias alturas <i>h</i> sobre el terreno.	68
Figura 46: Calibración de la eficiencia como suma ponderada de las eficiencias en varias coronas circulares. Los círculos indican las posiciones de las fuentes puntuales, situándose la más externa en la proyección del borde del detector.	69
Figura 47: Medida dinámica de suelos con un FIDLER, que es representativa de la superficie del término fuente que aparece sombreada.	69
Figura 48: Variación de la eficiencia para fotones de 59.5 keV de un detector HP-Ge y un FIDLER con el espesor de las fuentes certificadas de ²⁴¹ Am.....	72
Figura 49: Variación de la eficiencia para fotones de 59.5 keV (gráficas superiores) y del cociente I/S para un detector HP-Ge y un FIDLER con el espesor de la capa de tierra limpia entre ellos y las fuentes certificadas de ²⁴¹ Am de distinto espesor.....	72

Figura 50: Relación lineal entre los logaritmos de la eficiencia de los detectores HP Ge y FIDLER para los fotones de 59.5 keV y el cociente I/S (gráficas superiores) que explican el modelo potencial para la relación entre ambos parámetros (gráficas inferiores). Las líneas discontinuas muestran el intervalo de confianza del 95 % para los modelos propuestos.....	73
Figura 51: Distribución de la actividad con la profundidad en los recipiente de muestras inalteradas determinada con HP-Ge y su relación con el parámetro $\max(S/I, I/S)$	75
Figura 52: Efecto de la densidad en la eficiencia de SEGIS a 59.5 keV para los materiales Dirt1 y Resina y factor de corrección propuesto.....	76
Figura 53: Plantilla de ISOCS para la definición de los parámetros de una medida in situ sin colimación y aplicación a las medidas sobre el terreno asumiendo que la contaminación radiactiva está en un cilindro de 100 m de diámetro y 15 cm de espesor (capa rosa).	77
Figura 54: Modelo detallado obtenido con ISOCS del recipiente de acero inoxidable empleado como recipiente de las muestras inalteradas.	77
Figura 55: Comparación de las eficiencias calculadas con ISOCS con las obtenidas experimentalmente con fuentes certificadas en distintas geometrías y densidades en los recipientes de muestras inalteradas. Las líneas discontinuas muestran el intervalo de confianza del 95% para los modelos propuestos.....	78
Figura 56: Geometrías para la calibración matemática en eficiencia ofrecidas por el programa ISOTOPIC-32.	79
Figura 57: Relación entre los resultados de los análisis de muestras inalteradas de tierras efectuados con el cambiador FIDLER y los detectores HP-Ge: valores de la densidad aparente de las muestras inalteradas y su aproximación a una distribución normal (columna izquierda), histograma de los valores $\max(S/I, I/S)$ (columna central), y análisis de regresión lineal $y = a \cdot x + b$ (columna derecha) donde las líneas a trazos indican el intervalo de confianza del 95 % para las observaciones.	81
Figura 58: Comparación de las medidas directas sobre el sondeo con Mini-FIDLER con las medidas de las muestras obtenidas por corte del testigo y medidas con HP Ge.	82
Figura 59: Geometría para la determinación de la eficiencia de la Tolva-Revólver.	83
Figura 60: Medida simultánea con los sistemas HP-Ge para la calibración en eficiencia de la Tolva-Revólver.....	83
Figura 61: Evaluación del método de interpolación poligonal empleado para representar las áreas afectadas en la zona nº 2. Espaciados: Superior, medidas estáticas (espaciado medio 14 m). Medio, medidas dinámicas extensivas (3 m). Inferior, medidas dinámicas intensivas (0.4 m).	85
Figura 62: Distribución de frecuencias de las medidas de [²⁴¹ Am] obtenidas en la caracterización detallada de Palomares.	86
Figura 63. Superior: Caracterización de [²⁴¹ Am] en el suelo superficial de Palomares (datos campaña noviembre de 2006 hasta febrero de 2007). Inferior: Mapa de áreas proyectadas en un plano obtenido mediante la interpolación del vecino natural.	88
Figura 64: Detalle de la caracterización radiológica extensiva e imágenes aéreas obtenidas en 2007 en torno a los puntos de impacto nº 2 (zona 2) y 3 (zona 3) y la Sierra Almagrera (zona 6).	89

Figura 65: Diagramas de caja de los resultados de las medidas dinámicas de [²⁴¹ Am] en Palomares.	90
Figura 66. Caracterización radiológica de áreas (en [²⁴¹ Am]) en el suelo superficial de Palomares y modelos de áreas proyectadas en un plano calculadas mediante la interpolación del vecino natural.	92
Figura 67: Detalle de 350 x 300 m ² de las medidas de la [²⁴¹ Am] en los terrenos cercanos al punto de impacto de la bomba nº 2 y las áreas proyectadas en un plano calculadas mediante la interpolación poligonal. Los rectángulos en morado muestran la ubicación de 2 trincheras practicadas en 1966 y localizadas mediante GPR.	94
Figura 68: Resultados de las medidas espectrométricas estáticas (símbolos abiertos) superpuestas sobre las medidas dinámicas, ambas realizadas con FIDLER en las proximidades del punto de impacto nº 2.	95
Figura 69. Medidas espectrométricas estáticas (tono oscuro) superpuestas sobre los modelos de áreas de las medidas dinámicas proyectadas en un plano calculadas mediante la interpolación del vecino natural (tono claro).	96
Figura 70. Diagramas de caja de los resultados de las medidas de la tasa de dosis en contacto y a 1 m de altura en las Zonas 2, 3 y 6.	98
Figura 71. Histogramas de los resultados de las medidas de la tasa de dosis en contacto obtenidos en las Zonas 2 (izquierda) y 6 (derecha).	99
Figura 72. Localización de las medidas de la tasa de dosis a 1 m de altura sobre el terreno en la zona 6.	100
Figura 73. Localización de las medidas atípicas elevadas de la tasa de dosis a 1 m en las zonas 2 (izquierda) y 3 (derecha).	101
Figura 74: Ejemplo de los resultados de las medidas de [²⁴¹ Am] en muestras inalteradas de suelo superficial. El círculo exterior en cada punto corresponde a 0-5 cm, el intermedio a 5-10 cm y el exterior a 10-15 cm.	102
Figura 75. Medidas espectrométricas estáticas (tono oscuro) superpuestas sobre las áreas proyectadas obtenidas a partir de las medidas dinámicas (tono claro), ambas realizadas con FIDLER.	103
Figura 76. Áreas proyectadas a partir de los resultados de la medida de muestras inalteradas en los tramos de profundidad 0 - 5 cm, 5 - 10 cm y 10 - 15 cm.	105
Figura 77. Comparación de las áreas proyectadas calculadas a partir de las medidas dinámicas, estáticas y de muestras inalteradas en los tramos de profundidad 0 - 5 cm, 5 - 10 cm y 10 - 15 cm.	106
Figura 78. Origen de las muestras inalteradas seleccionadas para el estudio detallado de la distribución de la contaminación en profundidad (izquierda) y su fraccionamiento según la profundidad en cápsulas Petri (derecha).	107
Figura 79. Variación de la [²⁴¹ Am] con la profundidad en el suelo superficial de nueve puntos de muestreo en la zona 2.	108
Figura 80. Comparación de las [²⁴¹ Am] estimadas en las muestras inalteradas mediante su medida directa con FIDLER y HP-Ge y la calculada a partir de las fracciones separadas en función de la profundidad. Para cada punto se mantiene la escala para facilitar la comparación con la figura anterior.	109

Figura 81: Análisis de regresión lineal $y = a \cdot x + b$ entre los resultados obtenidos al comparar las estimaciones de $[^{241}\text{Am}]$ obtenidas con la medida de muestras inalteradas con FIDLER y HP-Ge con las derivadas de las medidas tras su fraccionamiento en porciones. Las líneas a trazos indican el intervalo de confianza del 95 % para las observaciones.	110
Figura 82: Resultados de los análisis con HP Ge de las muestras obtenidas de los testigos de los sondeos efectuados en la zona 2 N agrupados en diversos tramos de profundidad.	112
Figura 83: Distribución de la $[^{241}\text{Am}]$ en función de la profundidad obtenidos a partir de las medidas efectuadas con Mini-FIDLER sobre los sondeos efectuados en la zona 2 N. La localización de cada sondeo se muestra en la Figura 82.	113
Figura 84: Resultados de los análisis con HP Ge de las muestras obtenidas de los testigos de los sondeos efectuados en la zona 2 S agrupados en diversos tramos de profundidad.	114
Figura 85: Distribución de la $[^{241}\text{Am}]$ en función de la profundidad obtenidos a partir de las medidas efectuadas con Mini-FIDLER sobre los sondeos efectuados en la zona 2 N. La localización de cada sondeo se muestra en la Figura 84.	115
Figura 86: Resultados de los análisis con HP Ge de las muestras obtenidas de los testigos de los sondeos efectuados en la zona 3 agrupados en diversos tramos de profundidad.	117
Figura 87: Distribución de la $[^{241}\text{Am}]$ en función de la profundidad obtenidos a partir de las medidas efectuadas con Mini-FIDLER sobre los sondeos efectuados en la zona 3. La localización de cada sondeo se muestra en la Figura 86.	118
Figura 88: Resultados de los análisis con HP Ge de las muestras obtenidas de los testigos de los sondeos efectuados en la zona 3 agrupados en diversos tramos de profundidad.	119
Figura 89: Influencia del radio de interacción entre los resultados experimentales en el modelo tridimensional.	120
Figura 90: Influencia del radio de interacción entre los resultados experimentales en el modelo tridimensional. Los colores indican la $[^{241}\text{Am}]$ con el código empleado en el resto de figuras.	121
Figura 91: Estimación de los volúmenes de tierra de Palomares contaminados por zonas, profundidad y nivel de $[^{241}\text{Am}]$	123
Figura 92: Distribución de los volúmenes de suelos contaminados (fila superior) y de la actividad total de ^{241}Am (fila inferior) por zonas para el suelo superficial (izquierda), el subsuelo (centro) y la suma de ambos (derecha).	124
Figura 93. Definición de las parcelas según su nivel de contaminación y su distribución en profundidad. Los círculos negros indican la posición de las muestras empleadas en el estudio de granulometría (apartado 3.6).	126
Figura 94: Contenido en humedad en las muestras inalteradas.	129
Figura 95: Incremento de volumen en las muestras fraccionadas respecto a su estado inalterado.	130
Figura 96: Comparación de las densidades de las muestras inalteradas y su fraccionamiento.	130

Figura 97: Resultados de $[^{241}\text{Am}]$ en las fracciones granulométricas de las muestras inalteradas procedentes de las parcelas afectadas en Palomares. El eje de abscisas indica las fracciones granulométricas de acuerdo al siguiente código: A: < 40 μm , B: 40-63 μm , C: 63-125 μm , D: 125-250 μm , E: 250-500 μm , F: 0.5-1 mm, G: 1-2 mm, H: > 2 mm..... 131

Figura 98: Distribuciones de la masa y de la actividad de ^{241}Am en las fracciones granulométricas de las muestras inalteradas procedentes de las parcelas afectadas en Palomares. El eje de abscisas indica las fracciones granulométricas de acuerdo al siguiente código: A: < 40 μm , B: 40-63 μm , C: 63-125 μm , D: 125-250 μm , E: 250-500 μm , F: 0.5-1 mm, G: 1-2 mm, H: > 2 mm. Las barras de error indican la desviación típica de las muestras procesadas en cada parcela..... 133

Figura 99: Factores de reducción de volumen y $[^{241}\text{Am}]$ en las fracciones separadas (finos y gruesos) según el criterio de separación por tamaño de partículas. En la base de las barras se muestra el valor redondeado del factor de reducción..... 134

Figura 100: Ajuste entre las medidas de $[^{241}\text{Am}]$ realizadas con el HP-Ge y la tolva-revólver en muestras de tierras contaminadas. 136

Figura 101: Distribuciones de la $[^{241}\text{Am}]$ en el suelo superficial (0 - 20 cm) determinadas en muestras de 9.2 dm^3 mediante HP Ge y la tolva-revólver. Las barras verdes en las partes superior e inferior de cada gráfica muestran las medidas estáticas antes y después de retirar la muestra. 137

Figura 102: Situación de las muestras de 9.2 dm^3 en las parcelas 4 (Colinas) y 5 (Cabecera) de la zona 2 S. 137

Figura 103: Distribución de la $[^{241}\text{Am}]$ en el suelo superficial (0 - 20 cm) determinadas en muestras de 9.2 dm^3 mediante HP Ge y la tolva-revólver (FIDLER x 4) en la parcela 4 (fila superior, Zona 2 S Colinas) y la parcela 5 (fila inferior, zona 2 S Cabecera). Los números del título de cada gráfica corresponden con las localizaciones de la muestra indicadas en la Figura 102. Las barras verdes en las partes superior e inferior de cada gráfica muestran las medidas estáticas con FIDLER antes y después de retirar la muestra. 138

Figura 104: Distribuciones de la masa y de la actividad de ^{241}Am en las fracciones granulométricas de las muestras de 9.2 dm^3 procedentes de las parcelas 4 (Colinas) y 5 (Cabecera) de la zona 2 Sur. Las barras de error indican la incertidumbre de las abundancias con un intervalo de confianza del 95 % ($k = 2$)..... 139

Figura 105: Distribuciones de la masa y de la actividad de ^{241}Am en las fracciones granulométricas de las muestras de 9.2 dm^3 procedentes de las zona 2 Norte, 3 y 6. Las barras de error indican la incertidumbre de las abundancias con un intervalo de confianza del 95 % ($k = 2$). 141

Resumen

La caracterización radiológica de la contaminación que aún persiste en Palomares (Almería) como consecuencia del accidente antropogénico ocurrido en 1966 y que supuso la contaminación de varios centenares de hectáreas con actinoides permitirá establecer la distribución actual (en superficie y en profundidad) de la contaminación radiactiva en los suelos afectados por el accidente, información fundamental para una correcta selección de las posibles estrategias de recuperación ambiental de las zonas afectadas.

Para comprender la naturaleza de la contaminación, se propone un modelo termodinámico que permite explicar la oxidación del Pu y su posterior comportamiento en el medioambiente de Palomares. La contaminación consiste en partículas muy finas de óxidos de Pu formados inmediatamente después del accidente y que se dispersaron en el medioambiente, formando agregados con las partículas del suelo. También se encuentran ocasionalmente agregados de óxidos de Pu de mayor tamaño y cuya actividad varía entre 1 y 10 kBq. Así mismo, se demuestra que la razón $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}=0.30$ será constante hasta el año 2100.

Se han desarrollado métodos de espectrometría gamma in situ y en laboratorio para la detección de los fotones de 60 keV emitidos por el ^{241}Am . Se han efectuado medidas in situ georreferenciadas en tiempo real con un DGPS de precisión submétrica con detectores de centelleo FIDLER, realizando recorridos dinámicos (más de 300 000 datos) y medidas estáticas (más de 600 datos). Se recogieron más de 1 800 muestras inalteradas de suelo superficial y más de 730 muestras procedentes de sondeos efectuados hasta 5 m de profundidad en 321 puntos. Las muestras (0.1 dm^3) fueron analizadas en un dispositivo desarrollado al efecto y parte de ellas con detectores de Ge. Se ha demostrado el buen acuerdo entre las técnicas de medida independientes empleadas en la caracterización radiológica, validando la consistencia entre los métodos y la calidad de las medidas experimentales.

El análisis estadístico de las medidas de la tasa de dosis sobre el terreno revela que esta variable aumenta sobre el fondo natural debido a la contaminación del suelo superficial, aunque este incremento no supone un impacto radiológico significativo.

Con algunas de estas muestras se determinó la distribución de la contaminación en los primeros 15 cm de suelo y se estudiaron las distribuciones de actividad y masa en función del tamaño de partícula empleando previamente técnicas de tamizado en seco de las muestras de tierra. Por último, se ha desarrollado un prototipo para la segregación de tierras a media escala en función de su nivel de contaminación con muestras de 10 dm^3 .

Los resultados obtenidos demuestran que la distribución de la contaminación radiactiva con la profundidad es muy variada y depende fundamentalmente de las acciones de remedio emprendidas en 1966 y del uso posterior de las tierras. El estudio de granulometría presenta distintas situaciones que van desde la correlación directa entre masa y actividad hasta su correlación inversa, así como el factor de esponjamiento cuyo

valor varía entre 0.03 y 0.80. Las conclusiones de este estudio han sido confirmadas con los resultados iniciales del prototipo de segregación.

Estos datos han sido analizados conjuntamente mediante métodos geoestadísticos sencillos (interpolación del vecino natural) para determinar las superficies y volúmenes afectados según los niveles de contaminación correspondientes a los criterios de restricción de uso establecidos por el Consejo de Seguridad Nuclear. Se han distinguido 4 zonas diferenciadas por las características de la contaminación, estimándose que la superficie total que supera los criterios de restricción de uso es de 16 ha. El volumen en banco de los terrenos contaminados es de 38 400 m³, que se elevan a 50 500 m³ por el esponjamiento. Sin embargo, con una eventual aplicación de métodos de tamizado en seco dicho volumen se podría reducir a 31 500 m³.

SUMMARY

Introduction

Morning of January 17, 1966, US Air Force aircrafts, a B-52 bomber and KC-135 tanker, collided during a routine mid-air refueling operation [1] over Palomares (district in the municipal limits of Cuevas de Almanzora , Almería). The four crew members on the tanker plane and three on the bomber were lost in the explosion and four officers on the bomber survived. Both aircraft were completely destroyed and pieces of different sizes were spread for hundreds of hectares along the coast and in the sea in the surrounding area, among them four thermonuclear devices carried on the bomber. Two of them fell in the Almanzora River bed (Bomb N°1, numbered in the order the bombs were found in) and in the Mediterranean Sea (N° 4) at 9 km from the coast without any appreciable damage or radiological consequences because its parachute had opened. Bomb N° 2 crashed at high speed (its parachutes burned in the explosion) on the ground in a valley west of Palomares, causing the conventional explosive to detonate, volatilizing the Pu contained in the bomb and caught on fire, spreading in the air and contaminating extensive areas of land, even some distance from the point of impact. Bomb N°3 impacted less violently on the ground quite near the center of the town of Palomares, and only part of the conventional explosive was detonated, breaking the bomb up into pieces and volatilizing, but not burning a fraction of the plutonium it contained, spreading it in a more limited area.

Immediately after the accident, the US Air Force identified the zones most affected by radioactive contamination, defining a "Line Zero" [2] (Figure 1) which included around 220 ha from Puerto Blanco (where Bomb N° 2 was found) to the slopes of the Sierra Almagrera Mountains near the Almanzora River, where the search ended because the zone is difficult to access, uninhabited and in disuse. Remediation work on the most contaminated materials (basically surface soil and crops) began immediately. The criteria for deciding what material was contaminated were agreed upon by the Junta de Energía Nuclear (JEN) (Spanish Board of Nuclear Energy), and as a result, an approximate volume of 1 000 m³ of radioactive waste contained in 4 829 drums were shipped to the United States of America where they remain deposited at the Savannah River Facility, in Aiken (South Carolina) since April 8, 1966.

During the 1980s, intensive agriculture (greenhouses, drip irrigation) were introduced in the district, and growing urban development because of its interest for tourism, changed land use, as shown by construction from 1986 - 1988 of two irrigation reservoirs at the top of the valley where Bomb N° 2 impacted. These changes could lead to extensive and intensive use of land, causing significant land movement and location of residual contamination in them.

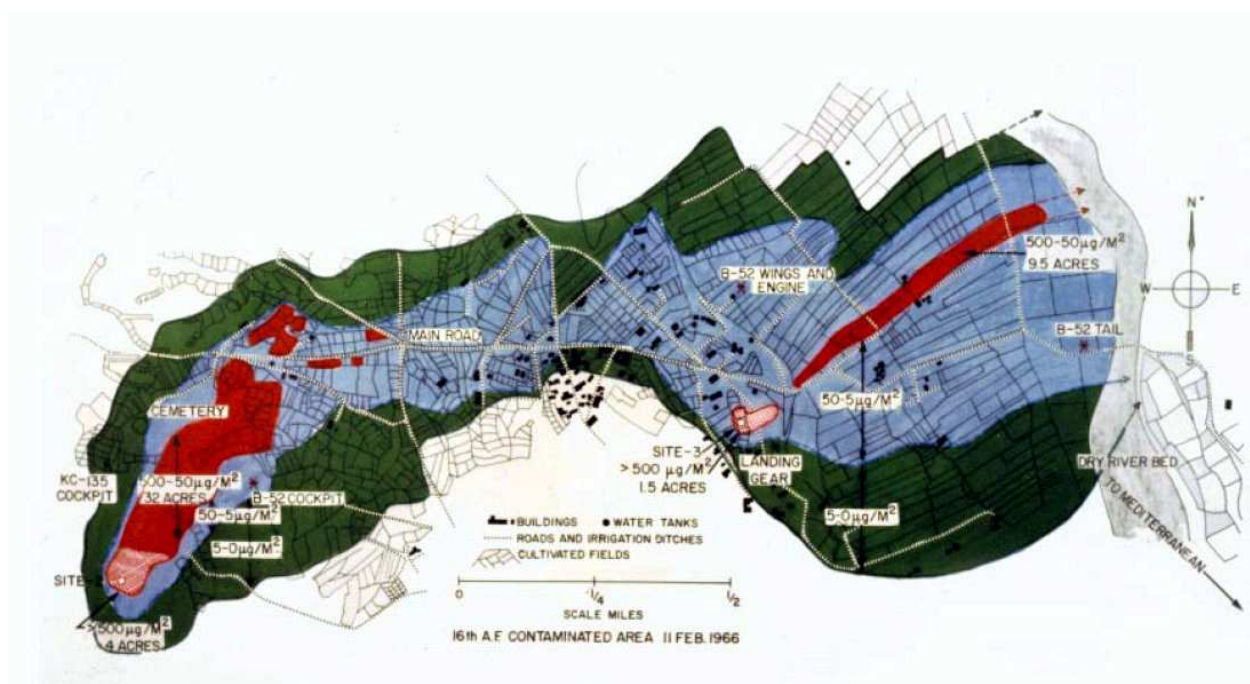


Figure 1: 'Zero Contamination Line' established by the USA Air Force on February 11st 1966 in Palomares región. Contamination levels are expressed in $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ Pu [2].

In 2003, the CIEMAT drafted the Plan for Energy and Environmental Research in Radiation Surveillance in Palomares (i.e., Plan de Investigación Energética y Medioambiental en Materia de Vigilancia Radiológica en Palomares, "PIEM-VR") approved by the Nuclear Safety Council (Consejo de Seguridad Nuclear, "CSN") and establishing the following criteria for the protection of the population in Palomares region [3]: i) To totally restrict activities that could lead to a residual dose level equal to or greater than 5 mSv/y. The derived soil concentration for 5 mSv/y is $25 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1} \text{ }^{239}\text{Pu}$ and ii) To partially restrict areas and carry out additional studies when activities may give rise to a residual dose of between 1 and 5 mSv/y. The derived soil concentration for 1 mSv/y is $5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1} \text{ }^{239}\text{Pu}$.

This work presents the methods developed and material used for the radiological characterization of the actinoid contamination that even today still remains in the Palomares soils. As result, the assessment of the in-situ bulk volume of contaminated soil above the CSN criteria is provided with detailed information on the distribution of the contamination in the surface soil (0 – 15 cm) and subsoil (0 – 5 m) and the activity distribution as a function of the particle size of the soil.

Materials and methods

The radiological characterization is entirely based in the direct measurements of the 59.5 keV photons from ^{241}Am with gamma spectrometers (Figure 2), namely 'Field Instrument for the Detection for Low Energy Radiation', FIDLER (NaI:Tl cylinder detector \varnothing 12.7 cm, 0.16 cm thick) [4] and several high resolution gamma spectrometers based on High Purity Ge detectors (HP-Ge), some of them located in low background lead shields.



Figure 2: DINARAD system based on FIDLER and DGPS (Left) and measurement of undisturbed soil samples in a low background high resolution Ge spectrometry system (Right).

For large scale field measurements, methods based on the FIDLER connected to DGPS with real time and submetric accuracy were developed to perform both dynamic (DINARAD) and static (ESTARAD) in-situ measurements. FIDLER dynamic measurements were taken every 2 s, providing lower activity concentration limit (LACL) $< 0.3 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$, $< 50\%$ relative overall uncertainty and a spatial resolution $< 1 \text{ m}^2$. Acquisition time for FIDLER static measurements ranged from 100 to 300 s, which reduced LACL to $\approx 0.01 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ and relative overall uncertainty to $< 10\%$. An additional campaign of static in-situ measurements was performed with a portable HP-Ge (SEGIS) which typically reached LACL $\approx 0.001 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ and relative overall uncertainty $< 5\%$ with 30 min acquisition time and, in addition, provided information about other nuclides, in particular the natural radionuclides (^{40}K , ^{238}U series ^{232}Th series).

Undisturbed surface soil samples (0 – 5 cm, 5 -10 cm, 10 -15 cm) were collected in 100 cm^3 stainless steel rings at the sites where static measurements were performed. They were measured in Palomares with a specifically-designed sample changer device using two FIDLER that allows to automatically process up to 8 samples (Figure 3, Left). Some of them were again measured at CIEMAT with HP-Ge for quality assurance. Stationary dose rate measurements at 0 and 1 m heights were performed at the same sites with a plastic scintillation detector calibrated in terms of ambient dose equivalent $\text{H}^*(10)$.

Bore drilling was performed in selected locations with no-water penetrating techniques, reaching depths from 50 cm to 6 m. The drill cores were scanned with a Mini-FIDLER device (Figure 3, Right) and samples were cut in the same ring geometry than the undisturbed soil samples but made on PVC instead of stainless steel. At least two samples were taken from core drill, one between 20 and 50 cm deep and the other at a maximum depth. In addition, samples were also taken at the drilling points with radiation profiles that indicated the possible presence of ^{241}Am contamination. All core drill samples were measured in the HP-Ge detectors at CIEMAT.



Figure 3: Sample changer device for the automatic measurement of undisturbed soil samples with two FIDLER detectors (Left). Drill core radiological scanning with the Mini-FIDLER instrument (Right).

Semiempirical and mathematical efficiency calibrations based on well-known codes (such as Microshield [5] or LABSOCS [6] & ISOCS [7]) were developed and tested against some geometries using ^{241}Am activity certified sealed sources, some of them specifically built for the undisturbed soil sample geometry. Calibration methods have been used to correct the important self-absorption of the low energy photons in the sample and the influence of other parameters such as soil chemical composition or soil density.

The distribution of the activity and mass as a function of the soil grain size was studied at laboratory scale using a jet dry sieving device (Figure 4) which separated several fractions from $< 40 \mu\text{m}$ up to $> 2 \text{mm}$ in previously dried soil samples with IR radiation. The obtained samples in a Petri dish ($\varnothing 47 \text{mm}$, 6 cm thick) were measured in the HP-Ge detectors.



Figure 4: Air jet dry-sieving device with detail of cyclone.

Figure 5: Prototype for the measurement of ^{241}Am in 9.2 dm^3 soil samples [8].

In order to confirm the results from the activity and mass distribution as a function of the particle size, a medium-scale plant in Palomares allows to deal with soil samples $> 100 \text{ kg}$ that were separated with different dry sieves from $< 40 \mu\text{m}$ to $> 2 \text{mm}$ using industrial mechanical dry sieve machines. A prototype [8] using 4 FIDLER was developed to

estimate the [^{241}Am] in a 9.2 dm^3 cylinder with and LACL $\approx 0.01 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ for 5 min acquisition time (Figure 5).

Results and discussion

In this work a thermodynamic model (Figure 6) has been developed to explain that most of the contamination consists of fine PuO_{2+x} particles ($1 - 10 \mu\text{m}$) originated when the weapons impacted the ground and some of the nuclear fuel was dispersed into the atmosphere. When deposited in the soil, these particles joined the soil particles with a very low mobility in the environment due to the small solubility of Pu oxides. Some bigger aggregates (particle size in the range of $10 - 500 \mu\text{m}$) were also created due to the heat from the exothermic reaction, with activities ranging from $1 - 10 \text{ kBq}$ which requires attention from the radiation protection point of view. These predictions fairly agree with the microscopy studies performed in some isolated particles.

Studies on the available isotopic ratios for the involved nuclides (^{235}U , ^{238}U , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu and ^{241}Am) allows to establish the following assumptions:

- The weapon nuclear fuel mass was mostly 20 % enriched U with a mass ratio $\text{Pu}/\text{U} \sim 0.8$. However, the activity ratio $\text{Pu}/\text{U} \approx 8000$, which means that the radiological consequences will come from the Pu decay.
- The activity ratios of ^{238}Pu and ^{240}Pu versus ^{239}Pu is a specific signature for the fuel used in the Palomares weapons, that permits to distinguish from other scenarios, including the global fall-out.
- The time evolution of the isotopic ratios (Figure 7) allows to date the separation of Pu from the reactor between 1956 and 1960. As a consequence, the maximum ^{241}Am mass concentration is expected to be reached around 2030.
- The activity ratio $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu} = 0.31 \pm 0.02$ will be constant for the period 2006 - 2066 (Figure 7). This permits to determine Pu activity through direct measurement of the 59.5 keV photons from ^{241}Am .
- The CSN restriction levels were calculated in terms of [^{241}Am] as $5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ for totally restricted activities and $1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ for partially restricted activities.

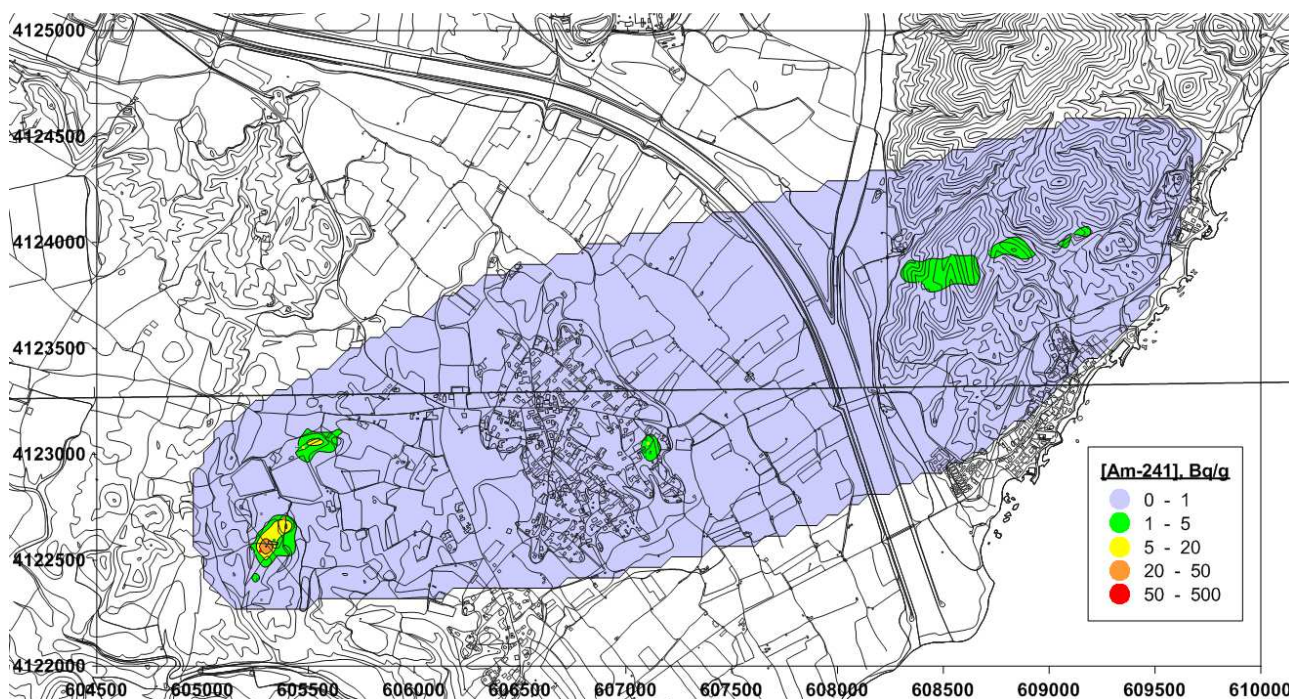


Figure 8: Area model based on the of the $[^{241}\text{Am}]$ in the topsoil (0 – 15 cm) dynamic measurements performed in Palomares region. Gray indicates free activities areas (below the CSN restriction use criteria); Green designates the partial restricted activities areas; yellow, orange and red indicate the totally restricted activities areas.

Based on the dynamic measurements, 619 points were selected under random expert criteria to perform 300 s FIDLER static in situ gamma spectrometry, to take 60 s stationary dose rate measurements and to collect 1848 undisturbed surface soil samples that were measured in Palomares in the FIDLER sample changer device. To validate this method, 642 samples (35% of the samples collected) were taken to CIEMAT to be measured again in low-background shielded HP-Ge detectors. Due to the noticeable self-attenuation, a specific protocol for measurements was developed including the manufacture of specific radioactive sources for calibration of several source geometries. This protocol has provided an excellent correlation between measures made with FIDLER changer in Palomares and those with Ge detectors in low-background shields at CIEMAT in Madrid. The data obtained in these measurements support the following points: i) $[^{241}\text{Am}]$ measurements show good agreement the previous dynamic measurements, and have similar surface distributions and calculated areas as reported above. This coherence is also observed in the results of the undisturbed soil sample analyses; ii) in the first 15 cm of topsoil, activity is distributed very irregularly, and all the situations possible are observed, from soil uncontaminated in the surface that later shows ^{241}Am activity at greater depths, to soil only contaminated in the first 5 cm. A further study with a depth resolution of 1 cm in a better sample geometry (Petri dish) confirms that the profiles of contamination ranges from very superficial to the increasing with depth down to 15 cm and iii) the analysis of the dose rate measured at 1 m high demonstrate that the surface contamination increases the dose rate in zone 2 up to $0.23 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ over the natural background radiation level (Figure 9). However, these results confirm that the risk of external irradiation in Palomares is insignificant even in the areas with the higher contamination levels in the surface soil.

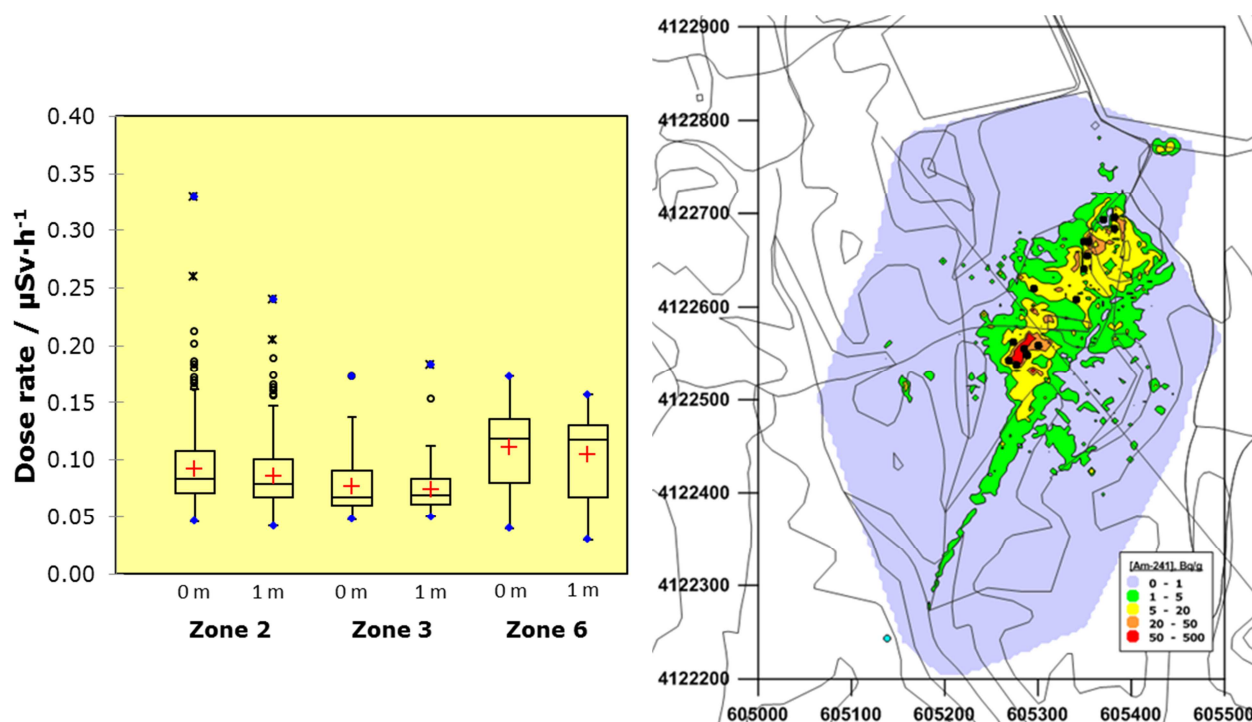


Figure 9: Box diagram for dose rate statistics (Left) revealing a high number of outliers that were found in the most contaminated surfaces in zone 2 (Right).

A total of 321 bores were drilled in selected locations at depths between 0.5 and 6 m in zones 2, 3 and 6. Special attention was paid to the two burial pits practiced in the zone 2 in during the initial remediation (1966) that were located using Ground Penetration Radar. After being scanned with the Mini-FIDLER, a total of 734 samples were prepared from the drill cores and taken to CIEMAT for gamma spectrometry analysis with HP-Ge obtaining more than 1 400 spectra.

The depth distribution of the contamination goes from strictly superficial in the undisturbed zones that have been unused since 1966 (hills and water runoff on zone 2 and the entire zone 6), to complex profiles down to some meters such as those observed in the pits in zone 2, which faithfully reflect filling done during the original remediation, and a diversity of profiles due to agriculture and earth moving in zones 2 and 3. In general, no contamination was observed at depth in areas where there was not already dirt in the topsoil.

A good correlation between the Mini FIDLER records and the sample analysis results was obtained. The detailed depth contamination profiles (7 700 data) were obtained with 10 cm resolution, that were entered in a direct volume rendering technique to calculate the in situ contaminated subsoil from 0.2 to 6 m: i) about 13 500 m^3 ha shows values over partial restriction activities level (12 000 m^3 in zone 2 and 1 500 m^3 in zone 3); ii) near 3 700 m^3 presents values over the total activities restriction level (3 600 m^3 in zone 2 and 100 m^3 in zone 3) and iii) contamination was not found in zone 6 deeper than 20 cm.

The total volume of contaminated soil that still remains in Palomares region exceeding the CSN land restriction use criteria is over 38 440 m^3 , with ^{241}Am activity $\approx 125 - 325$ GBq, which means that ^{239}Pu activity will be 640 - 1100 GBq (180 - 470 g). Figure 10 presents

volume and activity distributions by zone, where it can be seen that most of the radioactive contamination (> 85 %) persists in zone 2.

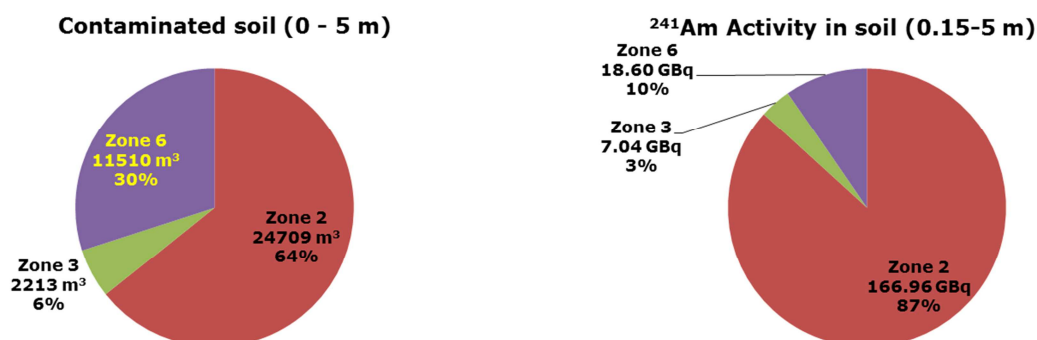


Figure 10: Volume (Left) and ²⁴¹Am activity (Right) in the soils of Palomares with contamination levels over the CSN restriction activities criteria.

Table I shows that 62 % of the contamination is in the topsoil and the remaining 38 % resides in the subsoil, with important differences in the zones. Zone 2 contains about 64 % of the total contaminated soil volume distributed almost equally both in the topsoil and in the subsoil and about 9 500 m³ soil present [²⁴¹Am] > 5 Bq·g⁻¹. Similar results were found in zone 3, but 10 to 20 times lower. By contrast, in zone 6 no contamination was found deeper than 20 cm but it contains 30 % of the total contaminated soil volume, from which only 45 m³ shows [²⁴¹Am] > 5 Bq·g⁻¹.

Table I: Volume of soil in Palomares region exceeding the CSN land restriction use criteria.

	Volume of contaminated soil / m ³							
	Zone 2		Zone 3		Zone 6		Total	
[²⁴¹ Am] / Bq·g ⁻¹	1- 5	> 5	1- 5	> 5	1- 5	> 5	1- 5	> 5
Topsoil (0 - 15 cm)	5023	6 360	671	290	11 465	45	17 159	6 695
Subsoil (0.15-5 m)	10 206	3 119	1 219	34	0	0	11 425	3 153
TOTAL	15 230	9 479	1 890	324	11 465	45	28 584	9 848

Seventy unaltered samples both from the topsoil and the core drills were separated into 40 µm to 2 mm particle sizes. Over 1 800 gamma spectrometry measurements with HP-Ge were made on the approximately 900 samples prepared for the particle size study. The first result from the soil sample separation is the swelling effect, that is, a volume increase due to the soil disaggregation that ranged from 3 - 85 % depending on the sample location. Evidences of radioactive particles bigger than usual (> 10 µm) and ²⁴¹Am activities over 1 000 Bq have been observed in a few cases when separating the soil samples and some of them were isolated for further studies. However, in general, most of the activity was concentrated in smaller particle sizes (Figure 11), but the mass distribution has shown different patterns depending on the nature of the soil. When the mass and activity particle size distributions are in anticorrelation (Figure 11, right), most of the radioactivity can be concentrated in a small mass fraction, which could provide a noticeable waste reduction (up

to a factor 4) if the $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ in the larger fraction in mass. These findings were confirmed in the medium-scale plant separating 10 soil samples of more than 100 kg each in 9.2 dm^3 cylinder geometry that were measured in the segregation prototype.

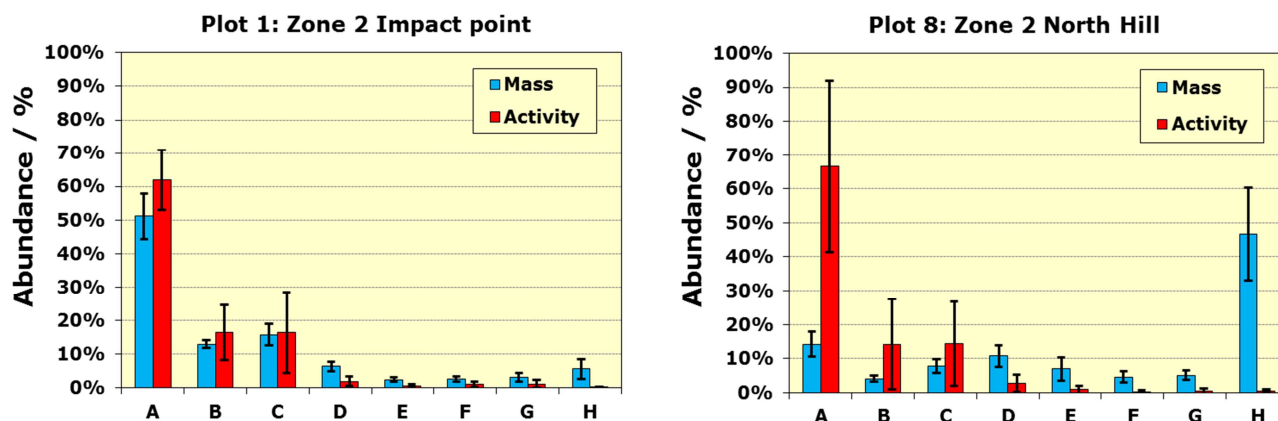


Figure 11: Examples of mass and ^{241}Am activity particle size distributions in Palomares contaminated soils. X axis indicates the particle size: A: $< 40 \mu\text{m}$, B: $40\text{-}63 \mu\text{m}$, C: $63\text{-}125 \mu\text{m}$, D: $125\text{-}250 \mu\text{m}$, E: $250\text{-}500 \mu\text{m}$, F: $0.5\text{-}1 \text{ mm}$, G: $1\text{-}2 \text{ mm}$, H: $> 2 \text{ mm}$. Error bars indicate 68 % confidence level.

Conclusions

An updated radiological characterization of Palomares region was required to quantify the remaining source term due to the 1966 accident on which the nuclear fuel from two thermonuclear weapons was partially dispersed. To this aim, different gamma spectrometric methods have been developed for the measurement of 59.5 keV photons from ^{241}Am in soil both in situ (dynamic and stationary), laboratory (undisturbed and processed 100 cm^3 samples) and medium scale plant (9.2 dm^3 samples).

A large amount of radiological data have been successfully recorded that allowed to build a detailed tridimensional map of the contaminated soil, estimating that about 16 ha shows $[^{241}\text{Am}]$ over the restriction activities levels established by the CSN, mostly in the surroundings of the impact points 2 and 3 near to Palomares but also in Sierra Almagrera (zone 6). Depth distribution of the contamination ranges from the topsoil contamination (0 – 15 cm) to complex profiles that reach 5 m deep. As a consequence, it is estimated that the in situ contaminated soil is over $38\,400 \text{ m}^3$. The particle size studies provided information in the swell percentage (which would increase the loose volume up to $50\,500 \text{ m}^3$) and the reduction factor that could be achieved in some plots using dry-sieving technologies to concentrate the activity in the smallest soil particles, yielding a final estimate of the waste of about $31\,500 \text{ m}^3$.

LISTADO DE ACRÓNIMOS

AMS	Espectrometría de masas con aceleradores
cc	Estructura cúbica centrada en el cuerpo
ccc	Estructura cúbica centrada en las caras
CAMD	Concentración de Actividad Mínima Detectable
CIEMAT	Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas
CL	Centelleo Líquido
CSN	Consejo de Seguridad Nuclear
DGPS	Differential Global Positioning System
DINARAD	Sistema de medida dinámica de la radiación
EA	Espectrometría Alfa
EDS	Espectroscopía de energías dispersivas de rayos X
EEUU	Estados Unidos de América
EGIS	Espectrometría Gamma in situ
ESTARAD	Sistema de medida estática de la radiación
FA-EEUU	Fuerza Aérea de los Estados Unidos de América
FIDLER	Field Instrument for the Detection for Low Energy Radiation
FWHM	Full Width at Half Maximum
GPR	Ground Penetrating Radar
GPS	Global Positioning System
GSBAS	Global Satellite-Based Augmentation System
h	Estructura hexagonal
HP-Ge	High Purity Germanium detector
H*(10)	Dosis equivalente ambiental
ICP/MS	Espectrometría de masas con fuente de plasma inducido
JEN	Junta de Energía Nuclear
ISOCS	In situ Object Counting System
LABSOCS	Laboratory Sourceless Calibration Software
LACL	Lower Activity Concentration Level
LEPS	Low Energy Photon Spectrometry

LWR	Light Water Reactor
MEB	Microscopía electrónica de barrido
NEA-OECD	Nuclear Energy Agency - Organisation for Economic Co-operation and Development
NMEA	National Marine Electronics Association
OIEA	Organización Internacional de Energía Atómica
PAR	Plan de Acción de Remedio
PIEM-VR	Plan de Investigación Energética y Medioambiental en materia de Vigilancia Radiológica en Palomares
PPTT	Planta piloto para el tratamiento de tierras
PUREX	Plutonium Uranium Reduction Extraction
PVC	Cloruro de Polivinilo
RDI	Región de interés
RQ	Radioquímica
SEGIS	Sistema de Espectrometría Gamma in situ (con HP-Ge)
TBP	TriButil Fosfato
TNPN	Tratado de No Proliferación Nuclear
TPCE	Tratado de Prohibición Completa de Ensayos Nucleares
UE	Unión Europea
URSS	Unión de Repúblicas Socialistas Soviéticas
US	United States (of America)
USB	Universal Serial Bus
US-SAC	Unites States Strategic Air Command
UTC	Universal Time Coordinated
UTM	Universal Transverse Mercator
Z	Número atómico
μ -XANEX	Microabsorción de rayos X de la radiación de sincrotrón cerca del borde de estructuras

0. OBJETIVOS

Este trabajo de investigación se ha desarrollado en el marco del Plan de Investigación Energética y Medioambiental en Materia de Vigilancia Radiológica en Palomares (PIEM-VR), desarrollado por el CIEMAT desde 2004, uno de cuyos objetos es la caracterización radiológica tridimensional de la contaminación que aún persiste en Palomares (Cuevas del Almanzora, Almería) como consecuencia del accidente antropogénico ocurrido en 1966 y que supuso la contaminación de varios centenares de hectáreas con actinoides (Pu y sus descendientes). Esta información permitirá establecer la distribución actual (en superficie y en profundidad) de la contaminación radiactiva con actinoides en los suelos afectados por el accidente, información fundamental para una correcta selección de las posibles estrategias de recuperación ambiental de las zonas afectadas.

Los objetivos que se plantearon para este trabajo de investigación fueron los siguientes:

- Proponer un modelo termodinámico que explique el comportamiento de los contaminantes en el medioambiente.
- Desarrollar métodos de trabajo con sistemas de espectrometría γ in situ que permitan la adquisición y evaluación sobre el terreno y en tiempo real (intervalos de 2 - 5 s) de concentraciones de actividad de actinoides superiores a los criterios de restricción de uso establecidos por el CSN.
- Desarrollar la metodología de obtención de muestras inalteradas de suelo superficial (hasta 15 cm) y sondeos (hasta 5 m) y un sistema de medida semiautomática para determinar la concentración de actividad de actinoides.
- Determinar la distribución de actividad de actinoides en función de la profundidad en el suelo con resolución de cm.
- Evaluar si existe una dependencia entre la distribución de la actividad de actinoides en el suelo en función de la distribución de tamaño de partículas contaminantes.
- Desarrollar un prototipo para la caracterización de actinoides en muestras de suelos y tierras del orden de 10 dm³.
- Evaluar el área y el volumen de los terrenos contaminados con niveles que superan los criterios de intervención del CSN basándose en el análisis integral de la información recogida con las anteriores medidas.

En este trabajo se emplean diversos términos y conceptos recomendados por la Organización Internacional de Energía Atómica (en adelante OIEA) en sus aplicaciones a la Seguridad Física Nuclear y a la Protección Radiológica [9]. En algunos casos también se emplearán términos que se recogen en la reglamentación nacional o internacional.

1. INTRODUCCIÓN

Los descubrimientos de los rayos X por Wilhelm Conrad Röntgen en 1895 y de la radiactividad natural en 1896 por Henri Becquerel supusieron el inicio del estudio de las radiaciones ionizantes y sus aplicaciones, que indudablemente han supuesto avances notables en el conocimiento y la tecnología en múltiples campos como la medicina, la ciencia de los materiales, la ingeniería y la producción de energía. Sin embargo, ya en aquellos tiempos se observaron los efectos sobre la salud que conllevaba la exposición a estas radiaciones o a los materiales que las emitían, iniciando el desarrollo del cuidado del ser humano frente a los efectos nocivos de las radiaciones ionizantes y de los medios para conseguirlo, disciplina conocida como protección radiológica.

Uno de estos efectos es la contaminación radiactiva, que se define como la presencia no intencionada ni deseada de sustancias radiactivas en la superficie o en el interior de sólidos, líquidos y gases, incluido el cuerpo humano. Esta contaminación se puede dispersar en el medioambiente como resultado de procesos físicos (suspensión, disolución, advección, difusión, etc.) que afectan a la velocidad de las diferentes moléculas en el medio aéreo, acuático o terrestre y cuya distribución en el espacio se denomina pluma o penacho.

Las actividades del hombre con estos materiales han provocado la existencia de áreas de la biosfera con contaminación radiactiva (aire, terrenos, aguas) que suponen un impacto sobre la salud de la población a distintas escalas, pudiendo afectar incluso a todos los habitantes de la Tierra, por ejemplo: la extracción y el procesado de minerales de Uranio y Torio; los accidentes radiológicos cuyas consecuencias reales o potenciales no son despreciables desde el punto de vista de la protección radiológica o la seguridad física nuclear y que han supuesto la dispersión de sustancias radiactivas (^{60}Co , ^{90}Sr , ^{137}Cs); algunas prácticas antiguas relacionadas con el uso de radionucleidos (^3H , ^{226}Ra); la gestión definitiva de los residuos radiactivos (almacenes temporales y definitivos); y, finalmente, la fabricación, ensayo, empleo y accidentes radiológicos relacionados con armas nucleares (principalmente, ^{239}Pu y ^{241}Am).

Para eliminar la presencia de estas contaminaciones antropogénicas, la sociedad actúa mediante lo que se denomina como acción de remedio* [10]. Esta no implica que se elimine completamente la contaminación del terreno por lo que su uso es más correcto que términos como rehabilitación, restitución, recuperación o restauración, que denotan el restablecimiento de las condiciones previas a la contaminación y que en rigor no podrá realizarse en la práctica.

Las acciones de remedio se basan en la caracterización radiológica del área contaminada para la determinación de la naturaleza y la actividad de los radionucleidos

*En inglés '*remediation*', pero en castellano no existe la palabra '*remediación*'. Se define como cualquier medida que se lleve a cabo para reducir la exposición a la radiación ionizante debida a la contaminación de terrenos, ya sea actuando sobre la propia contaminación o sobre las vías de exposición al ser humano.

presentes en su superficie, subsuelo y estructuras. Generalmente consiste en investigaciones previas de los antecedentes y la realización de medidas experimentales sobre el terreno (en adelante *in situ*) donde se recogen un número suficiente de muestras representativas del emplazamiento que luego son preparadas y analizadas en laboratorios de medidas radiológicas con espectrometrías para las radiaciones alfa (α), beta (β) y gamma (γ).

Uno de los accidentes más conocidos que supuso la dispersión de material nuclear en el medioambiente ocurrió el 17 de enero de 1966 en Palomares (pedanía del municipio de Cuevas del Almanzora, Almería), como consecuencia de la colisión de dos aeronaves militares de Estados Unidos de América (en adelante EEUU) durante una operación de repostaje en vuelo. Centenares de hectáreas de terreno y toneladas de vegetación y cultivos fueron contaminados y sometidos a una acción de remedio inmediata, estableciéndose después planes de vigilancia radiológica de la población y el medioambiente desarrollados por la Junta de Energía Nuclear (en adelante JEN), que en 1986 se transformó en el Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (en adelante CIEMAT).

Esta memoria se centra en el trabajo experimental realizado para la caracterización radiológica y propone un Plan de Acción de Remedio (en adelante PAR) del terreno contaminado con actinoides (Pu y Am) que aún persiste en Palomares, presentando en algunas zonas niveles de contaminación superiores a los señalados como límite por el Consejo de Seguridad Nuclear (en adelante CSN) para asegurar la protección de la población.

1.1 Funcionamiento de las armas termonucleares

El diseño y los materiales de las armas termonucleares continúa siendo información reservada, pero existen referencias bibliográficas [11], que permiten suponer que los mecanismos están basados en la configuración de Teller-Ulam por implosión en dos etapas (Figura 1). La cubierta de la bomba es un cilindro de Al que recubre otro de Pb para reducir la radiación. El interior del cilindro se rellena con un material plástico ligero como la espuma de poliestireno. En cada extremo del cilindro se disponen dos etapas separadas por un blindaje de U natural (es decir, compuesto en un 99.3 % de su masa por el isótopo ^{238}U):

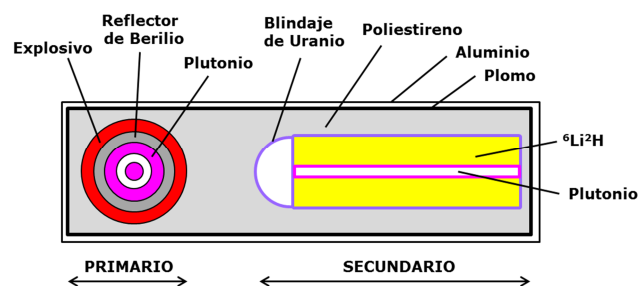


Figura 1: Configuración Teller-Ulam de una bomba termonuclear en 2 etapas (fisión y fusión) [11].

- El primario consiste en una esfera de combustible para la fisión (^{239}Pu) rodeada de otra capa esférica de un reflector de neutrones de Be. Ambas se rodean con otra esfera concéntrica que contiene un explosivo plástico de alta potencia con una complicada geometría, que se denominan lentes y que son detonados mediante un complejo sistema electrónico.

- El secundario es un cilindro en cuyo eje hay una varilla de unos 2-3 cm de diámetro de combustible para la segunda fisión (^{235}U o ^{239}Pu) rodeada de otro cilindro, que constituye el combustible para la fusión, compuesto por Deuterio de Litio ($^6\text{Li}^2\text{H}$) y contenido finalmente en un cilindro de material de alta densidad como U o W que se denomina cápsula de fusión.

En la primera etapa, un explosivo plástico de alta potencia comprime el Pu contenido en el primario hasta conseguir la supercriticalidad e iniciar la reacción de fisión. El reflector de neutrones de Be permite reducir la cantidad de combustible necesaria para iniciar esta reacción. El 80 % de la energía de la fisión son rayos X que atraviesan el blindaje e ionizan toda la espuma de poliestireno, produciéndose un plasma que aumenta muchísimo la temperatura y por tanto comprime la cápsula de fusión hasta un factor 30 (la densidad aumenta un factor 1000), lo que provoca la ablación paulatina de su superficie y acelera la implosión hacia el eje del secundario que contiene Pu, que al comprimirse en un factor 4 inicia su fisión al ser alcanzado por los neutrones térmicos generados en el primario. La segunda fisión acelera la implosión y al alcanzar temperaturas del orden de 10^8 K, se inicia la reacción de fusión, produciendo neutrones rápidos de 2.45 y 14.1 MeV que fisionan el ^{238}U del blindaje que separa ambas etapas y se origina la explosión. En ambas etapas se producen grandes cantidades de tritio (^3H) que no interfiere en el funcionamiento y cuyas consecuencias radiológicas son insignificantes en comparación con las otras sustancias y radiaciones producidas.

La explosión de una bomba termonuclear ocurriría en $6 \cdot 10^{-8}$ s y la energía liberada sería del orden de $6 \cdot 10^{16}$ J, que equivale a 14 millones de veces la energía liberada por 1 t de TNT. La mayor explosión conocida de una bomba termonuclear se produjo sobre el archipiélago de Nueva Zembla (Rusia) el 31 de octubre de 1961 y liberó $2 \cdot 10^7$ J \equiv 50 Mt de TNT; es decir, \approx 2500 veces la energía de la bomba de Hiroshima y \approx 1 % de la energía liberada diariamente por el Sol.

A pesar del enorme poder destructivo de estas armas, se estima que se han fabricado 130 000 bombas nucleares que están en poder de 8 países que han declarado sus arsenales (EEUU, Rusia, Reino Unido, Francia, China, India, Pakistán y Corea del Norte). Hecho que ha promovido el desarrollo de tratados internacionales como el Tratado de No Proliferación Nuclear (TNP, abierto a la firma en 1968) y el Tratado de Prohibición Completa de Ensayos Nucleares [12] (TPCE, abierto a la firma en 1996) que persiguen prohibir la posesión, reducir el arsenal existente (con excepción de los cinco países miembros permanentes del Consejo de Seguridad de Naciones Unidas), prohibir el desarrollo de armas nucleares y la realización de explosiones nucleares de cualquier índole. El éxito de estas iniciativas es relativo porque aunque están suscritos por una amplísima mayoría de los 196 estados de la Organización de Naciones Unidas (190 suscriptores del TNP, 183 firmantes del TPCE aunque 20 de ellos aún no lo han ratificado), lo cierto es que las excepciones son muy significativas ya que India, Pakistán y Corea del Norte no han firmado el TNP ni el TPCE. Por otro lado, EEUU y China, no han ratificado aún el TPCE.

1.2 Propiedades de los Actinoides

La disponibilidad para el llenado del orbital 5f define a los elementos actinoides [13] cuyo número atómico está comprendido entre el 89 (Ac) y el 103 (Lr): ${}_{89}\text{Ac}$, ${}_{90}\text{Th}$, ${}_{91}\text{Pa}$, ${}_{92}\text{U}$, ${}_{93}\text{Np}$, ${}_{94}\text{Pu}$, ${}_{95}\text{Am}$, ${}_{96}\text{Cm}$, ${}_{97}\text{Bk}$, ${}_{98}\text{Cf}$, ${}_{99}\text{Es}$, ${}_{100}\text{Fm}$, ${}_{101}\text{Md}$, ${}_{102}\text{No}$ y ${}_{103}\text{Lr}$. Los actinoides con números atómicos superiores a 92 se denominan también transuránidos.

En general, los actinoides son metales de color plateado que se pasivan rápidamente en aire por la formación de una capa de óxido superficial estable. Esta es una reacción exotérmica que en contacto con el aire es pirofórica*. Su densidad es elevada (entre $11.7 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ del Am y $20.5 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ del Np), no son buenos conductores eléctricos (su resistividad eléctrica a 293 K varía entre $150 \text{ n}\Omega\cdot\text{m}$ para el Th y $1.5 \mu\Omega\cdot\text{m}$ para el Pu) ni térmicos (su conductividad térmica a 293 K oscila entre $7 \text{ W}\cdot(\text{K}\cdot\text{m})^{-1}$ para el Pu y $54 \text{ W}\cdot(\text{K}\cdot\text{m})^{-1}$ para el Th). Sus propiedades mecánicas son también discretas pero todos ellos (excepto el Ac), presentan varias estructuras cristalinas que ofrecen una metalurgia única. Los actinoides son paramagnéticos y todos sus isótopos son radiactivos, teniendo algunos isótopos de Th, U y Pu una vida media suficiente para considerar dichos elementos como primordiales (han existido en su forma actual desde la formación de la Tierra, cuya edad se estima en $4.54\cdot 10^9$ a) y por tanto a dichos elementos se les considera de origen natural.

Las distribuciones de probabilidad radial de los orbitales f no son esféricas y se extienden en ejes y planos específicos, lo que implica que el enlace con electrones f sea muy direccional. En los lantanoideos, el orbital 4f no se extiende suficientemente fuera del núcleo atómico y sus electrones apenas pueden participar en el enlace químico, que está dominado por los orbitales 5d y 6s. Además, la falta de simetría esférica fuerza que los electrones de valencia deban acercarse más al núcleo para equilibrar la carga eléctrica (contracción lantanoide). En consecuencia, las propiedades físicas y químicas de los lantanoideos adyacentes apenas varían y todos ellos presentan un comportamiento químico homogéneo con tendencia a formar iones trivalentes y compuestos químicos similares.

En los actinoides la probabilidad radial del orbital 5f tiene un alcance mayor e incluso se puede formar un orbital híbrido 5f - 7s - 6d en el que los átomos se pueden intercambiar electrones y que explica el peculiar comportamiento químico y cristalográfico de los actinoides. En la Figura 2 se comparan el radio atómico y el punto de fusión de los actinoides con los de los lantanoideos (llenado del orbital 4f) y los metales de transición (llenado del orbital 5d) [14]:

- Los radios atómicos de los actinoides ligeros (desde el Th hasta el Pu) decrecen de un modo similar a los metales de transición 5d, mucho mayor que la contracción en los lantanoideos. Ello indica que los electrones 5f de los actinoides ligeros están deslocalizados, lo que acerca aún más los orbitales exteriores al núcleo y disminuye el volumen atómico como ocurre en los metales de transición. En el Am el radio atómico aumenta un 20 % manteniéndose en torno a ese valor para los actinoides más pesados tal y

*Arde en contacto con el aire de manera espontánea

como ocurre con los lantanoides, lo que indica que los electrones 5f se localizan más cerca del núcleo iónico y son químicamente inertes.

- El punto de fusión de los lantanoides crece suavemente con el número atómico, con descensos para el Eu e Yb por el llenado de la capa 4f. En los metales de transición el punto de fusión crece con el número atómico de un modo muy acusado alcanzando valores muy altos hasta completar a la mitad el nivel 5d, seguido de un descenso igual de acusado al emparejarse los electrones de valencia. En los actinoides ligeros, el punto de fusión desciende con el número atómico para incrementarse casi un 50 % en el Am y luego tender a la baja en los actinoides más pesados. El descenso del punto de fusión con el número atómico se relaciona con la pérdida de simetría de la estructura cristalina, y se explica porque la banda 5f es tan estrecha que la degeneración en dos o más bandas inducidas por la distorsión supone un estado de menor energía que la disposición de la banda de conducción en ciertas direcciones derivadas de las estructuras con alta simetría.

La Figura 3 muestra los diagramas de fase binarios de los actinoides donde se observa el comportamiento del punto de fusión descrito anteriormente. En el Th se ha calculado que por átomo sólo hay una fracción de electrón en la capa 5f que permite que la simetría predomine y muestre la estructura ccc*. Al aumentar el número de electrones en la capa 5f, estos juegan un papel más importante en el enlace y propician que sean más convenientes las estructuras cristalinas menos simétricas, hasta llegar a la estructura monoclinica del Pu, que además presenta hasta seis estados alotrópicos antes de alcanzar el punto de fusión, que es relativamente bajo para un metal (913 K). Para el Am, los electrones 5f están localizados y son las bandas s y d las que prevalecen en la estructura cristalina ganando en simetría y aumentando notablemente el punto de fusión.

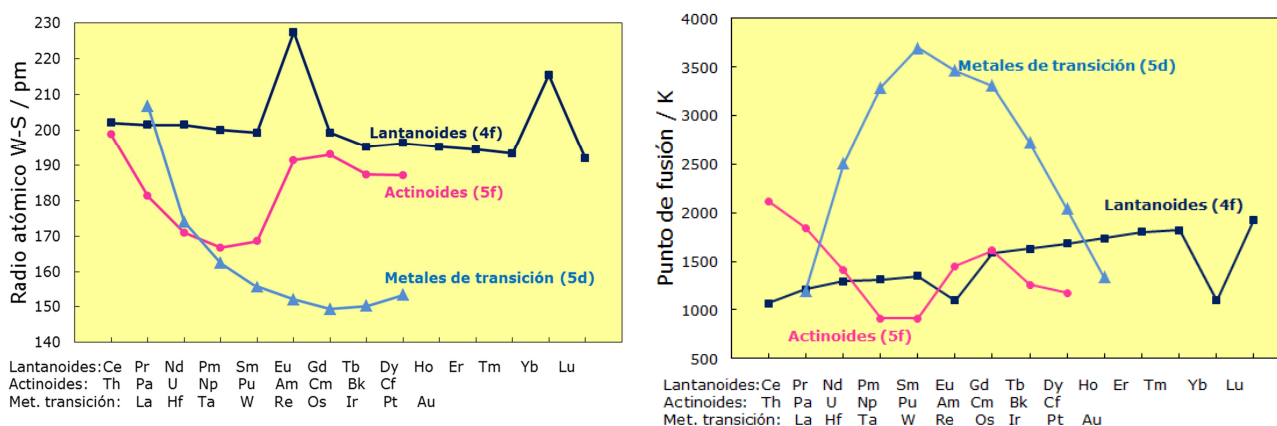


Figura 2: Comparación de los radios atómicos de Wigner-Seitz [14](Izquierda) y puntos de fusión (Derecha) para los lantanoides (4f), los metales de transición (5d) y los actinoides (5f).

* Cúbica Centrada en las Caras (FCC en terminología sajona)

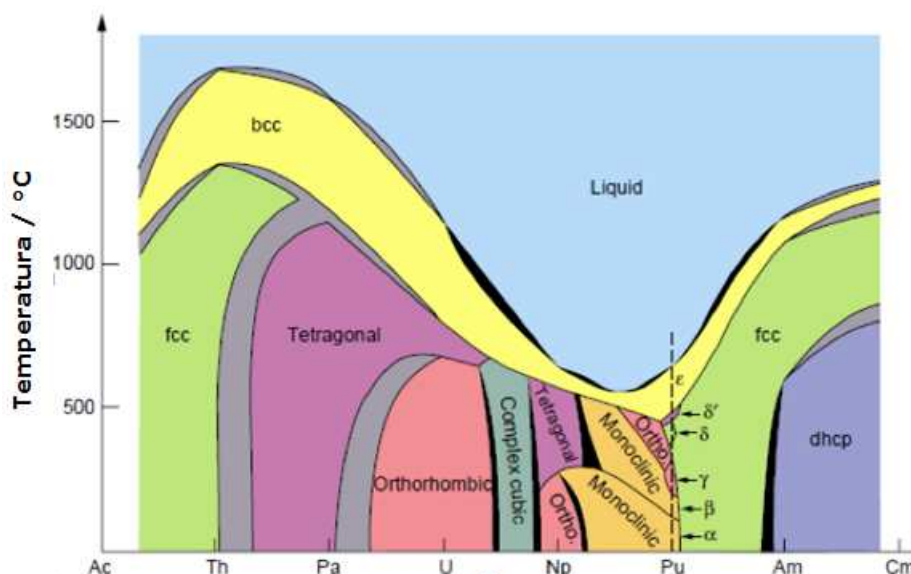


Figura 3: Diagramas de fase binarios de los actinoides [14] [15].

En el U, Pu y Am hay suficientes electrones por átomo en el nivel 5f para que sea la banda f la que domine el enlace químico. Además, se pueden hibridar o mezclar con electrones con la misma energía pero procedentes de otro orbital formando estados de carácter orbital mixto. Ello permite prever la facilidad de estos actinoides para formar todo tipo de compuestos con cualquier elemento.

La Tabla I presenta las propiedades nucleares de los isótopos de U, Pu y Am relevantes para la fabricación de armas termonucleares, donde llama la atención las diferencias de varios órdenes de magnitud en la vida media, la actividad específica, la tasa de fisión y la energía generada en la desintegración. Todos ellos pueden ser fisionables e incluso pueden sufrir la fisión espontánea con probabilidades del orden de 10^{-12} - 10^{-8} por desintegración.

Tabla I: Propiedades nucleares de los isótopos de U, Pu y Am empleados en las armas termonucleares [11] [16].

Isótopo	Vida Media / a	Actividad específica / Bq·g ⁻¹	Fisión (espectro promedio)		Tasa de fisión espontánea / fisiones·s ⁻¹ ·kg ⁻¹	Masa crítica (Fase α) / kg	Energía desintegración / W·kg ⁻¹
			Sección eficaz / B	Neutrones por fisión			
²³⁴ U	2.44·10 ⁵	2.32·10 ⁸	1.223	1.8	3.9	>41	0.18
²³⁵ U	7.04·10 ⁸	8.00·10 ⁴	1.235	2.0	5.6·10 ⁻³	48	6·10 ⁻⁵
²³⁸ U	4.47·10 ⁹	1.24·10 ⁴	0.594	1.97	5.51	No tiene	1.75·10 ⁻³
²³⁸ Pu	87.7	6.34·10 ¹¹	1.994	2.28	1.20·10 ⁶	9	5.7·10 ⁵
²³⁹ Pu	2.41·10 ⁴	2.30·10 ⁹	1.800	2.9	10.1	10.5	1.93
²⁴⁰ Pu	6 563	8.40·10 ⁹	1.357	2.19	478 000	40	7.07
²⁴¹ Pu	14.4	3.81·10 ¹²	1.648	----	<0.8	12	129.4
²⁴² Pu	373 300	1.44·10 ⁸	1.127	3.07	805 000	>75	0.12
²⁴¹ Am	432.7	1.27·10 ¹¹	1.378	2.0	500	83.5	114.7

Las emisiones de radiación ionizante de estos isótopos se muestran en la Tabla II [17]. Salvo el ²⁴¹Pu que es un emisor β (e⁻), el modo principal de desintegración de estos isótopos es la emisión de partículas α (He²⁺) con energías entre 4 - 6 MeV, aunque también

emiten fotones y electrones con energías inferiores a 25 keV y 100 keV, respectivamente. El ^{235}U y el ^{241}Am también emiten fotones con energías superiores a 50 keV con probabilidad superior al 50 % y que pueden ser empleadas para la caracterización radiológica mediante la detección directa de dichas radiaciones.

Tabla II: Principales radiaciones ionizantes emitidas por los isótopos de U, Pu y Am empleados en las armas termonucleares. Los intervalos de energía de rayos X se indican como (RX) [17].

Isótopo	Emisiones α		Emisión de fotones		Emisión de electrones	
	Energía / keV	Probabilidad / %	Energía / keV	Fotones por 100 desintegraciones	Energía / keV	Electrones por 100 desintegraciones
^{234}U	4 722 4 775	28.4 71.4	11-19 (RX)	10.0	5-20 33-37	10.8 20.9
^{235}U	4 366 4 398	18.8 57.2	11-19 (RX) 143.8 185.7	40.0 10.9 57.0	6-20 21-28 76	47 20.4 5.1
^{238}U	4 151 4 198	22.3 77.5	11-19 (RX)	7.9	6-20 29-33	8.4 16.3
^{238}Pu	5 456 5 499	28.8 71.0	11-21 (RX)	10.6	6-22 22-26	10.6 20.6
^{239}Pu	5 144 5 157	17.1 70.8	11-21 (RX)	4.7	7-10 30-35	15.4 6.1
^{240}Pu	5 124 5 168	27.2 72.7	11-21 (RX)	10.3	5-22 24-28	10.3 19.8
^{241}Pu	----	----	----	----	20.8 (máx)	99.7
^{242}Pu	4 858 4 902	23.4 76.5	11-21 (RX)	8.7	5-22 23-28	8.4 17.1
^{241}Am	5 443 5 486	13.2 84.4	12-22 (RX) 26.3 59.5	37.7 2.3 35.9	6-14 11-16 37-41	33.4 15.9 30.2

1.2.1 Plutonio

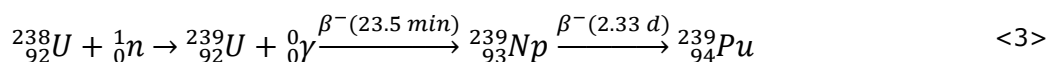
El Pu ($Z = 94$) es un metal grisáceo y quebradizo con aspecto similar al Ni y que se oxida fácilmente mostrando una gama de colores ocres, dorados, plateados y morados según transcurre el tiempo, hasta formar un polvo fino de color verde oliva que corresponde al PuO_2 .

Fue descubierto en diciembre de 1940 por G.T. Seaborg, E.M. McMillan, I.W. Kennedy y A.C. Wahl [18] [19] al irradiar uranio natural con deuterones de 16 MeV obtenidos en un ciclotrón de 1.5 m de diámetro de la Universidad de California en Berkeley, siendo el segundo elemento sintetizado artificialmente tras el Np:



Se han sintetizado artificialmente 17 isótopos de Pu cuyo número másico varía desde 232 hasta 248, y todos ellos son radiactivos con vidas medias que varían entre 1 s (^{228}Pu) y $8 \cdot 10^7$ a (^{244}Pu). Este último se considera un radionucleido primordial ya que se han encontrado niveles de varias partes en 10^{15} [20]. También se han obtenido niveles de partes por 10^{12} de ^{239}Pu (vida media: 24 360 a) en varios yacimientos uraníferos de pechblenda en Canadá, EEUU y, en particular, en Oklo (Gabón) [21] donde se ha comprobado que estuvieron activos una veintena de reactores naturales de fisión hace $1.7 \cdot 10^9$ a [22]. Los siguientes isótopos son los más relevantes en las aplicaciones del Pu y presentan notables diferencias en sus propiedades nucleares:

- El ^{238}Pu posee la probabilidad de emisión más alta de fisión espontánea pero, además, su elevada actividad específica produce más neutrones debido a la interacción de las partículas α con elementos ligeros. Como consecuencia, se produce una gran cantidad de calor que ha permitido su aplicación como fuente de electricidad en generadores termoeléctricos, satélites artificiales o marcapasos.
- El ^{239}Pu tiene unas propiedades de fisión moderadas que mejoran las del ^{235}U . De hecho, la masa crítica de ^{239}Pu puro se estima en unos 6 kg. Produce calor suficiente para hervir agua en 2 h o incluso en el cambio de forma alotrópica $\text{Pu}(\alpha) \rightarrow \text{Pu}(\beta)$ al superar 398 K, hecho que debe ser considerado en el diseño de sus aplicaciones militares. Se produce por captura neutrónica del ^{238}U :



- El ^{240}Pu produce unas 30 000 veces más neutrones por fisión que el ^{239}Pu , lo que supone un problema para iniciar y mantener bajo control la reacción en cadena difícil de conseguir en sus aplicaciones. Su presencia incrementa la masa crítica y produce más calor debido a su alta actividad específica. Se produce por captura neutrónica del ^{239}Pu :



- El ^{241}Pu es fisible, emite pocos neutrones y produce poco calor porque se desintegra mediante una emisión β que produce ^{241}Am , otro isótopo fisible que en su desintegración emite, además de partículas α , fotones de 59.5 keV que pueden suponer un riesgo de exposición a la radiación externa. Se produce por captura neutrónica del ^{240}Pu :



- También se producen pequeñas cantidades de ^{242}Pu no fisible, con baja sección eficaz para la captura de neutrones y que se desintegra lentamente en ^{238}U , por lo que no suele ser un problema en las aplicaciones del Pu. Se produce por captura neutrónica del ^{241}Pu :



El Pu se produce industrialmente en los reactores nucleares fundamentalmente a través de reacciones de captura de neutrones. Se encuentra en el combustible nuclear irradiado. En la actualidad, se estima que en el mundo se producen anualmente 70 t.

Aunque el ${}^{239}\text{Pu}$ es mayoritario, la presencia de los otros isótopos no permite su utilización como combustible de las armas termonucleares. El primer método adoptado para aumentar la pureza en ${}^{239}\text{Pu}$ fue detener el reactor aproximadamente transcurridos tres meses de funcionamiento y extraer el combustible con un grado de quemado de sólo $0.1 \text{ MW d}\cdot\text{t}^{-1}$. Con ello se conseguía el Plutonio Grado Arma, con un 93 - 95 % (en masa) de ${}^{239}\text{Pu}$ y menos del 6 % (en masa) de ${}^{240}\text{Pu}$, con un enorme coste económico.

La Tabla III muestra las fracciones isotópicas de la masa [23] y actividad totales para el Pu producido tanto en LWR* (según el grado de quemado hasta conseguir el grado armas), como en reactores MAGNOX y CANDU desarrollados por Reino Unido y Canadá, respectivamente. El quemado con este último tipo de tecnologías permite mejorar el rendimiento de producción de Pu. Hay que mencionar que también es inevitable la presencia de ${}^{241}\text{Am}$ (<0.02 % en masa) derivada de la desintegración del ${}^{241}\text{Pu}$ que se inicia inmediatamente tras su generación en el propio reactor.

Tabla III: Fracciones isotópicas expresadas en porcentaje de la masa total [23] y de la actividad total para el Pu producido en reactores nucleares en función del grado de quemado.

Producción (Grado de quemado)	${}^{238}\text{Pu}$		${}^{239}\text{Pu}$		${}^{240}\text{Pu}$		${}^{241}\text{Pu}$		${}^{242}\text{Pu}$	
	Masa	Actividad	Masa	Actividad	Masa	Actividad	Masa	Actividad	Masa	Actividad
Grado armas (< 1 GW d·t ⁻¹)	0.04	0.98	93.3	8.33	6.0	1.96	0.6	88.73	0.04	0.0002
LWR (20 GW d·t ⁻¹)	0.5	1.52	73.5	0.81	20.0	0.81	5.3	96.86	1.2	0.0008
LWR (30 GW d·t ⁻¹)	1	1.2	60	0.27	22.0	0.37	13	98.10	4.0	0.0011
LWR (60 GW d·t ⁻¹)	4.4	5.42	46.3	0.21	24.9	0.41	12.7	93.97	11.7	0.0033
MAGNOX (5 GW d·t ⁻¹)	<0.001	0.00	68.5	0.77	25.0	1.02	5.3	98.21	1.2	0.0008
CANDU (7.5 GW d·t ⁻¹)	<0.001	0.00	66.5	0.74	26.5	1.08	5.3	98.17	1.5	0.0011

En función de la fase primaria empleada para la separación, los métodos para recuperar el Pu del combustible irradiado pueden ser acuosos (extracción líquido-líquido, intercambio iónico y precipitación) o no acuosos (electrorrefinado de sales fundidas y volatilidad de los fluoruros). Entre los años 1950 - 1960 se separaron alrededor de unas 500 t de Pu mediante la tecnología de extracción líquido-líquido PUREX (Plutonium Uranium Reduction Extraction) [24]. Este proceso de separación se basa en la disolución del combustible irradiado en medio ácido (7 M HNO₃), retirándose los sólidos insolubles que pueden emulsionar. A continuación a estos residuos sólidos se les somete a una disolución con 30 % TBP (TriButil Fosfato) y el resto un disolvente hidrocarburado como el keroseno.

* Light Water Reactor (reactor de agua ligera)

Lo que produce la formación de complejos de U y Pu como $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 2\text{TBP}$ mientras el Am y el Cu quedan en la fase acuosa. El Pu se separa del U tratando la solución de keroseno con sulfamato ferroso ($\text{FeH}_4\text{N}_2\text{O}_6\text{S}_2$) en agua que reduce a Pu(III), disolviéndose en la fase acuosa.

Dado que el objeto de esta memoria es el comportamiento del Pu en el medio ambiente, es conveniente introducir algunas de las propiedades quimicofísicas de este elemento que serán de relevancia para la justificación posterior de los resultados.

Desde el punto de vista microestructural, el Pu(s) presenta hasta 6 formas alotrópicas en un intervalo de 540 K (Figura 4) [25] cuyas estructuras cristalográficas tienen una menor simetría cuanto menor es la temperatura, al objeto de evitar los elevados estados direccionales derivados de la hibridación de los orbitales. Se observan bruscos cambios en la densidad y una inusual contracción longitudinal con la temperatura en las fases δ y δ' que influye notablemente en sus propiedades físicas.

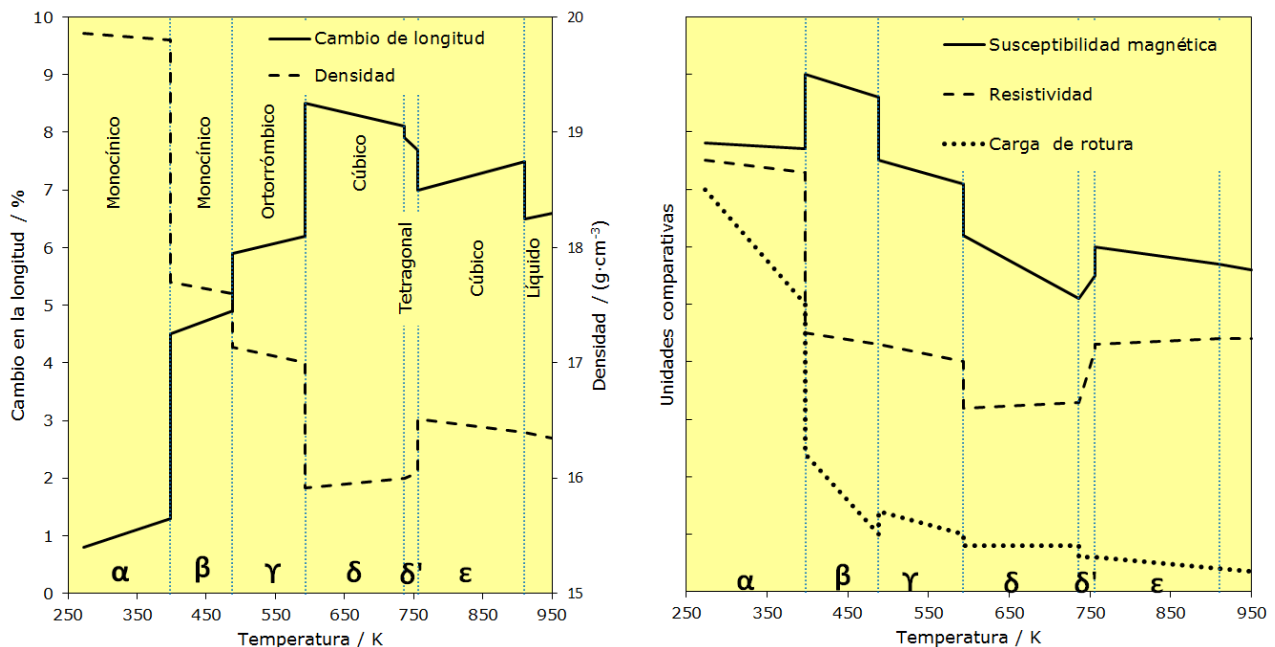


Figura 4: Evolución de las propiedades del Pu en función de sus cambios alotrópicos [25]. En la figura de la derecha se han empleado distintas escalas para facilitar la comparación.

Las fases δ y δ' presentan mejores propiedades mecánicas que facilitan su mecanizado y pueden conseguirse a temperatura ambiente aleando el Pu con porcentajes molares menores al 5 % de elementos trivalentes como el Al, Ce, In, Am y, en particular, el Ga [26], cuyo diagrama de fases y efectos en la expansión térmica se muestran en la Figura 5.

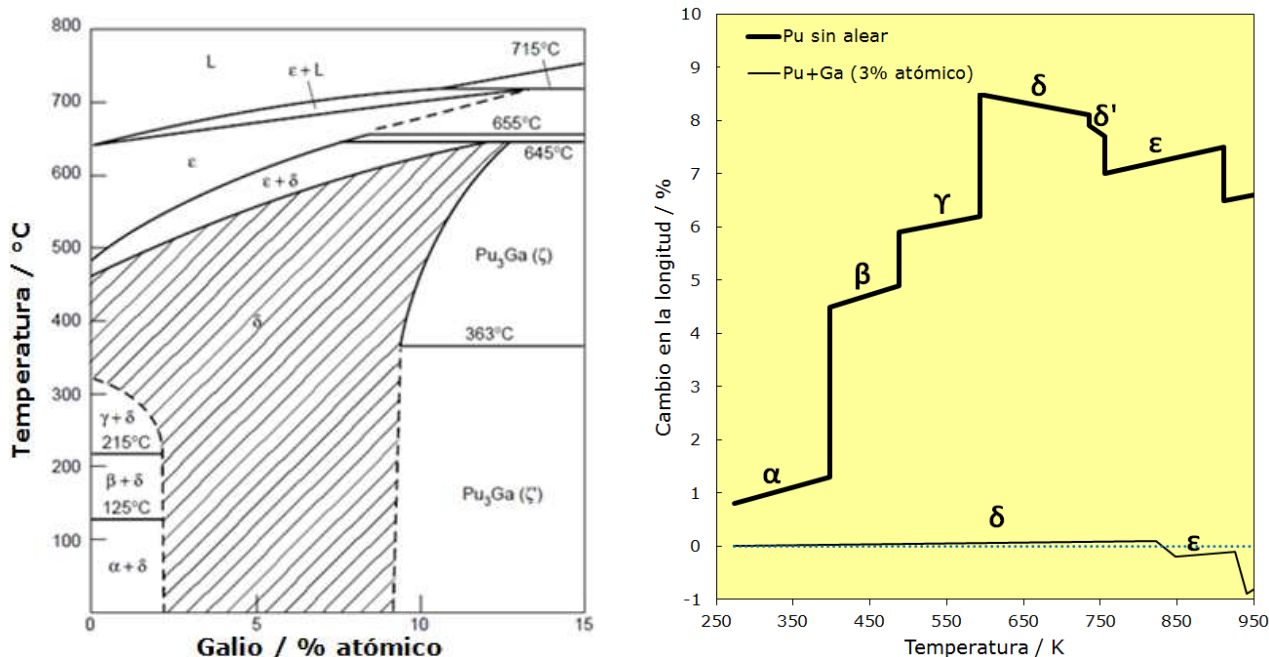


Figura 5: Diagrama binario de fases en equilibrio del Pu-Ga [26] (izquierda) y evolución de la dilatación del Pu (puro) y del Pu- 3 %_a Ga (derecha).

La configuración electrónica del Pu^0 es $[\text{Rn}]7s^26d^15f^5$, donde los 8 e^- de valencia se encuentran en la banda de conducción, lo que implica que los 5 e^- del nivel 5f se comportan como e^- deslocalizados del nivel 5d en los metales de transición: participan y sostienen el enlace metálico en la fase α . En consecuencia, el Pu tiene 5 estados de oxidación, desde III hasta VII, y es poco electronegativo (1.26 en la escala de Pauling). Virtualmente, el Pu puede formar compuestos, complejos (orgánicos e inorgánicos) o aleaciones con cualquier elemento. En particular, son notables sus reacciones con otros elementos para dar carburos (PuC , PuC_2 , PuC_3), halogenuros (PuF_3 , PuF_4), nitratos [$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$, $\text{Pu}(\text{NO}_3)_3$] y silicatos. Ello explica la facilidad del Pu para formar agregados compactos e insolubles con otras partículas que le rodeen.

El Pu en disolución acuosa puede mostrar sus cinco estados de oxidación. El estado Pu(VII) sólo se obtiene en condiciones oxidantes extremas como por ejemplo la solución 2.5 M Na(OH). En medio ácido, y en función de su acidez, el Pu puede aparecer en disolución como Pu(III), Pu(IV), Pu(V) y Pu(VI), incluso simultáneamente, ya que sus potenciales redox apenas superan 1 V (Figura 6), lo que supone otra propiedad única del Pu y que tiene implicaciones medioambientales, ya que compuestos insolubles de Pu(III) o Pu(IV) pueden pasar a ser solubles en estados Pu(V) y Pu (VI).

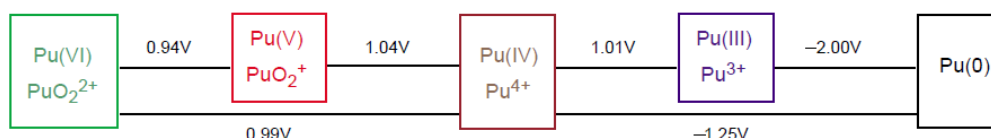


Figura 6: Potenciales redox entre los distintos estados de oxidación del Pu en medio ácido [27].

1.2.2 Uranio

El U ($Z = 92$) es un metal de color plateado con densidad muy elevada ($19.1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$). Se encuentra en la naturaleza en concentraciones del orden de partes por millón (ppm), con una abundancia similar a la del Mo y superior a la de la Ag o el Cd. Existen unos 200 minerales que contienen U como componente esencial y algunos de sus compuestos vienen utilizándose como colorantes desde la época romana, pero fue descubierto como elemento por Martin Heinrich Klaproth en 1789. En 1896, durante sus estudios sobre la fosforescencia, Henri Becquerel descubrió la radiactividad al exponer sales de U sobre una placa fotográfica cubierta con papeles opacos a la luz visible.

Como se muestra en la Figura 3, el U(s) tiene tres formas alotrópicas: U(α) ortogonal hasta 941 K; U(β) tetragonal en el intervalo 941 K - 1048 K; U(γ) cc en el intervalo 1048 - 1405 K, que es su punto de fusión. Las propiedades físicas de las formas α y β son muy direccionales por lo que para conseguir la estructura cc se emplea su aleación con Molibdeno.

La configuración electrónica del U es $[\text{Rn}]7s^26d^15f^3$, es poco electronegativo (1.38 en la escala de Pauling) y tiene 4 estados de oxidación, desde III hasta VI. Los estados U(IV) y U(VI) forman los óxidos UO_2 (insoluble salvo en ácidos fuertes) y UO_3 (soluble y móvil por contener la estructura uranilo $\text{O}=\text{U}=\text{O}$) pero es común encontrar el Uranio en la forma U_3O_8 , ya que es más estable termodinámicamente y que se produce paulatinamente en la superficie del U^0 en un proceso más relajado que en el Pu donde no se observa piroforicidad.

Más del 99 % en masa del U natural corresponde al ^{238}U y menos del 1 % corresponde al ^{235}U , único isótopo de origen natural que es fisible (puede experimentar una fisión nuclear con neutrones de cualquier energía). Como consecuencia de la desintegración del ^{238}U , también se encuentra en la naturaleza el ^{234}U en proporciones inferiores al 0.006 % en masa. Sin embargo, debido a las diferencias en sus actividades isotópicas, las fracciones en actividad están dominadas por el ^{234}U , tal y como se muestra en la Tabla IV donde se definen varios grados de U en función de sus diversas aplicaciones. Existen además otra veintena de isótopos radiactivos de U con números másicos desde 217 hasta 242.

Tabla IV: Composiciones isotópicas en masa y actividad del Uranio

Grado Uranio	Fracción en masa			Fracción en actividad		
	^{238}U	^{235}U	^{234}U	^{238}U	^{235}U	^{234}U
Empobrecido	99.796 %	0.200 %	0.004 %	59.511 %	0.769 %	39.719 %
Natural	99.274 %	0.720 %	0.006 %	47.147 %	2.206 %	50.647 %
Reactor	95.967 %	4.000 %	0.033 %	12.853 %	3.456 %	83.691 %
Investigación	49.575 %	50.000 %	0.425 %	0.596 %	3.875 %	95.529 %
Armas	6.000 %	93.000 %	1.000 %	0.031 %	3.106 %	96.863 %

El U forma compuestos importantes con otros metales, el C, el N y los haluros, en particular el F que se emplea en la producción del combustible nuclear. La estructura UO_2^{+2} también se combina fácilmente con proteínas e incluso con el ARN y ADN. En conclusión, el

transporte y movilidad del U en el medioambiente es muy superior al de otros actinoides como el Pu y el Am.

1.2.3 Americio

El Am ($Z = 95$) es un metal de color plateado con densidad $13.7 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$. No se encuentra en la naturaleza y fue descubierto en 1946 en la Universidad de California en Berkeley por el mismo equipo de científicos que descubrió el Pu, al bombardear isótopos de Pu con neutrones en un reactor nuclear para obtener ^{241}Pu y luego observar su desintegración por emisión de partículas β^- :



Existen 17 isótopos de Am, con números másicos entre 232 y 247, todos ellos radiactivos, pero los más relevantes por sus aplicaciones y relevancia radiológica son el ^{241}Am (vida media de 432.7 a) y el ^{243}Am (vida media de 7 380 a).

El Am(s) tiene dos formas alotrópicas: Am(α), red cristalina tipo h estable hasta los 1 090 K, en que se produce la transformación alotrópica a Am(β), red cristalina ccc con intervalo de estabilidad $1\ 090 \text{ K} < T < 1\ 449 \text{ K}$, temperatura a la que se produce el cambio de fase, es decir, el punto de fusión. Es un metal paramagnético, dúctil, muy maleable e incluso superconductor a temperaturas por debajo de 0.75 K.

La configuración electrónica del Am es $[\text{Rn}]7s^25f^7$, es poco electronegativo (1.30 en la escala de Pauling) y tiene seis estados de oxidación, desde II hasta VII, siendo el AmO_2 su óxido más estable, de color negro, soluble en ácidos y con estructura cristalina tipo fluorita como la del PuO_2 .

No existen aleaciones o compuestos intermetálicos de Am de interés particular, aunque se han estudiado los sistemas con lantánidos y transuránidos. En contraste, se han descrito más de 180 compuestos con ligandos aniónicos inorgánicos para formar hidruros, haluros, carburos, carbonatos, fosfatos, sulfuros y sulfatos entre otros. También forma compuestos orgánicos como oxalatos, acetatos o derivados de la acetona. Como en el caso del Pu, el Am presenta una gran facilidad para formar agregados compactos e insolubles con otras partículas que le rodean.

1.2.4 Transuránidos dispersos en el medioambiente

El desarrollo de la energía nuclear para la producción de electricidad ha incrementado la producción de transuránidos como el Pu (500 t), Np (35 t), Am (10 t) y Cm (2.5 t). En aquellos casos donde se han producido accidentes que afectan a la contención en las centrales nucleares (como por ejemplo: Windscale-Sellafield, Kysthym, Chernobyl y Fukushima), las liberaciones de transuránicos al medioambiente son equivalentes al 1 % de las cantidades liberadas por las explosiones de armas nucleares (Tabla V). Sin embargo, en las explosiones nucleares realizadas en el subsuelo o en profundidades marinas los actinoides se quedan retenidos en las matrices rocosas vitrificadas o precipitan en el lecho

marino, dada su baja solubilidad, y no se dispersan o transportan fuera del lugar de la detonación. Por el contrario, los ensayos en aire vaporizan estos materiales en partículas de pequeño diámetro (entre 10 nm y 10 μ m) que alcanzan la estratosfera, dispersándose por toda la atmósfera antes de depositarse de nuevo en la superficie [28].

En términos de masa, la actividad liberada en las más de 2 000 pruebas nucleares atmosféricas reconocidas desde 1945 se estima en \approx 5 t de Pu, 95 kg de Am y \approx 1 g de Cm [29], constituyéndose como nuevos componente en los suelos y las aguas y que es irrecuperable.

Tabla V: Actividad de varios radionucleidos liberada en el accidente de Chernobyl (1986) y las pruebas nucleares en la atmósfera (1945-1989) [29].

Radionucleido	Vida media	Accidente de Chernobyl	Pruebas nucleares en la atmósfera
^{131}I	8.04 d	$1.8 \cdot 10^6$ TBq	$6.75 \cdot 10^8$ TBq
^{137}Cs	30.0 a	$8.5 \cdot 10^4$ TBq	$9.5 \cdot 10^5$ TBq
^{239}Np	2.36 d	$4.00 \cdot 10^5$ TBq	No disponible
^{238}Pu	87.7 a	No disponible	No disponible
^{239}Pu	24 110 a	$1.5 \cdot 10^1$ TBq	$6.5 \cdot 10^3$ TBq
^{240}Pu	6 563 a	$1.3 \cdot 10^1$ TBq	$4.4 \cdot 10^3$ TBq
^{241}Pu	14.4 a	No disponible	$1.4 \cdot 10^5$ TBq

Las peculiares propiedades químicas de los actinoides, derivadas de la relativa extensión del orbital 5f lejos del núcleo, son la causa de los múltiples estados de oxidación que presentan y la relativa facilidad de cambio entre ellos. Lo que favorece tanto la formación de docenas de especies químicas con comportamientos ambientales muy distintos como, dados sus diferentes estados de oxidación, una gran variabilidad en función de las condiciones redox y pH que influirán en las fases minerales que se pudieran formar como consecuencia de la alteración por el medio ambiente. Estas especies suelen combinarse fácilmente con los componentes del suelo formando agregados cuyo tamaño puede variar entre 0.1 μ m y 2 mm.

Dada la escasa solubilidad de los actinoides (que aun así puede ser relevante en el caso del Am), el transporte y la migración de las partículas del suelo está muy limitado, aunque las partículas inferiores a 10 μ m pueden resuspenderse en el aire, migrar y/o ser aspiradas por cualquier ser vivo, lo que implica un riesgo de contaminación interna para las sociedades que vivan en dicho entorno.

1.3 El accidente de Palomares

Tras la II Guerra Mundial la situación geopolítica provocó la división en dos bloques de la mayoría de los países, liderados bien por EEUU o por la Unión de Repúblicas Socialistas Soviéticas (URSS). Estos bloques sostuvieron numerosos e intensos enfrentamientos dialécticos, políticos, sociales y económicos pero nunca emprendieron acciones directas entre sí por lo que al periodo entre 1947 y 1991 (año de la disolución de la URSS) se le conoce como 'Guerra Fría'. Sin embargo, ello no fue óbice para una desmesurada escalada

armamentística que culminó con el desarrollo, fabricación en serie y uso estratégico de armas termonucleares.

La operación 'Chrome Dome' fue un programa militar de respuesta inmediata llevado a cabo por el Mando Estratégico Aéreo de los EEUU (US-SAC) en el periodo 1960 - 1968 y en el cual se mantenían misiones de 24 h en vuelo continuo sobre el Círculo Polar Ártico y el Mar Mediterráneo hasta alcanzar la frontera de Turquía con la URSS en el Cáucaso. Cada misión era realizada por 2 bombarderos B-52 Stratofortress con alcance transatlántico y capacidad para cargar varias bombas termonucleares. Aun así, era preciso efectuar repostajes en vuelo con la ayuda de aviones nodriza que apoyaban desde las bases acordadas en países aliados de los EEUU, como el suscrito con el Gobierno de España en 1953 [30]. En la Figura 7 se muestran las rutas de la operación Chrome Dome que implicaban el repostaje en vuelo sobre territorio español de hasta 6 vuelos al día: en la ida entre Zaragoza y Barcelona y en el regreso, justo a la entrada sobre tierra firme en la vertiente sur de la Sierra Almagrera junto a la desembocadura del río Almanzora. Este lugar era conocido entre el personal de vuelo como la 'Silla de Montar', resultaba sencillo su avistamiento desde las altitudes superiores a 10 000 m y además las condiciones meteorológicas normalmente facilitaban la operación del repostaje.

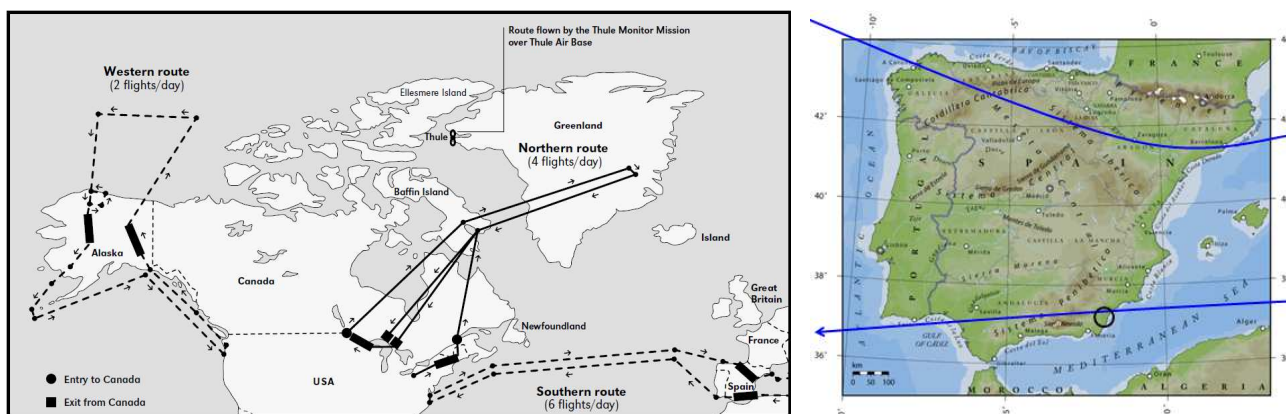


Figura 7: Rutas de la operación Chrome Dome sobre España. El círculo indica la entrada de los vuelos de regreso por la Sierra Almagrera junto a la desembocadura del río Almanzora (Cuevas del Almanzora, Almería).

A las 10:22 (hora local) del 17 de enero de 1966, sobre la vertical situada a 5 km al N de Palomares se produjo la colisión accidental del bombardero B-52G 'Tea-16' con el avión nodriza KC-135 'Troubador 14' que provenía de la base militar de Morón de la Frontera (Sevilla) [1]. Minutos antes, el bombardero B-52G 'Tea-12' fue repostado en vuelo sin novedad con ayuda del avión nodriza KC-135 'Troubador 12' y fueron los primeros en informar del desastre y sus posibles consecuencias.

Las aeronaves siniestradas seguían rumbo OSO (256°) con una velocidad de $700 \text{ km}\cdot\text{h}^{-1}$ a una altitud de 9300 m , el viento soplaba a unos $110 \text{ km}\cdot\text{h}^{-1}$ desde el NO (305°) y a nivel del mar a unos $37 \text{ km}\cdot\text{h}^{-1}$ desde el O (270°) [31]. El avión nodriza explotó en la colisión y el bombardero fue desintegrándose en grandes fragmentos que por la acción del viento fueron empujados hacia el Sur, donde una vez recorrido $\approx 1 \text{ km}$ se produjo la separación del soporte que alojaba 4 bombas termonucleares modelo MK-28FI de unos 800 kg cada una [32]. Los 4 tripulantes del avión-nodriza más otros tres del bombardero perecieron en la explosión y sobrevivieron cuatro oficiales del bombardero al

eyectarse sus asientos y actuar sus paracaídas, cayendo 1 en tierra y 3 en el Mar Mediterráneo, de donde fueron rescatados por dos pescadores de la zona [1]. Ambas aeronaves quedaron completamente destruidas y sus restos de distintos tamaños se extendieron sobre cientos de hectáreas en el litoral y el mar de la zona. Cada bomba disponía de dos paracaídas de 5 y 20 m de diámetro, pero varios de ellos fueron dañados por el fuego y actuaron de modo diferente en cada bomba tras la separación como se muestra en la Figura 8:

- **Bomba nº 1** (encontrada al anochecer del 17 de enero de 1966, no se detectó contaminación α): Sólo se desplegó correctamente el paracaídas de 5 m impactando, a unos $143 \text{ km}\cdot\text{h}^{-1}$, sobre terreno arcilloso del cauce del río Almanzora. Sufrió daños leves que no afectaron a su integridad, no explosionando el explosivo convencional ni afectando al combustible nuclear.
- **Bomba nº 2** (encontrada a las 9:30 del 18 de enero de 1966, se detectaron niveles elevados de contaminación α): Ambos paracaídas resultaron muy dañados y en consecuencia impactó, a unos $357 \text{ km}\cdot\text{h}^{-1}$, sobre una colina de un valle pedregoso, produciendo: i) la detonación del explosivo convencional, que creó un cráter de 20 m de diámetro y 1.8 m de profundidad y provocó un pequeño incendio. Sus restos se localizaron hasta a 90 m desde el punto de impacto, y ii) la volatilización de parte del combustible nuclear, formando una nube de polvo negro (probablemente PuO_2) que se dispersó en las inmediaciones.
- **Bomba nº 3** (encontrada a las 10:30 del 18 de enero de 1966, se detectaron niveles moderados de contaminación α): Se desplegó el paracaídas de 5 m pero estaba dañado por el fuego, la bomba impactó en un solar llano y pedregoso en el casco urbano de Palomares, a unos $247 \text{ km}\cdot\text{h}^{-1}$, provocando: i) la detonación de parte del explosivo convencional, pero sin incendio; los restos se localizaron a más de 450 m del punto de impacto, y ii) parte del combustible nuclear se volatilizó y se dispersó en forma de una nube de polvo negro (probablemente PuO_2).
- **Bomba nº 4** (encontrada el 7 de abril de 1966 en el lecho marino a unos 870 m de profundidad a 9 km de la costa [1]): Ambos paracaídas actuaron correctamente y su caída duró varios minutos dirigiéndose hacia el Mar Mediterráneo hasta alcanzar su superficie a unos $33 \text{ km}\cdot\text{h}^{-1}$. Sufrió leves deformaciones estructurales debido a la presión del agua que no afectaron a su interior, no explosionando el explosivo convencional ni afectando al combustible nuclear.

Como consecuencia de los hechos acaecidos, una gran cantidad de restos se esparcieron por toda la comarca en unos 15 km^2 (1500 ha), algunos de ellos de tamaño considerable como las cabinas de los aviones, los motores y la sección de cola del B-52 (Figura 9). Afortunadamente, ningún vecino resultó herido y los daños materiales se limitaron a la rotura de cristales y grietas en algunas casas. Los restos de las bombas y sus sistemas accesorios fueron acondicionados y enviados por avión a EEUU, en tanto que los demás restos fueron embarcados en navíos cargueros de la Fuerza Naval de EEUU, que tras comprobar que no estaban contaminados, los vertieron en el Océano Atlántico en zonas de elevada profundidad.

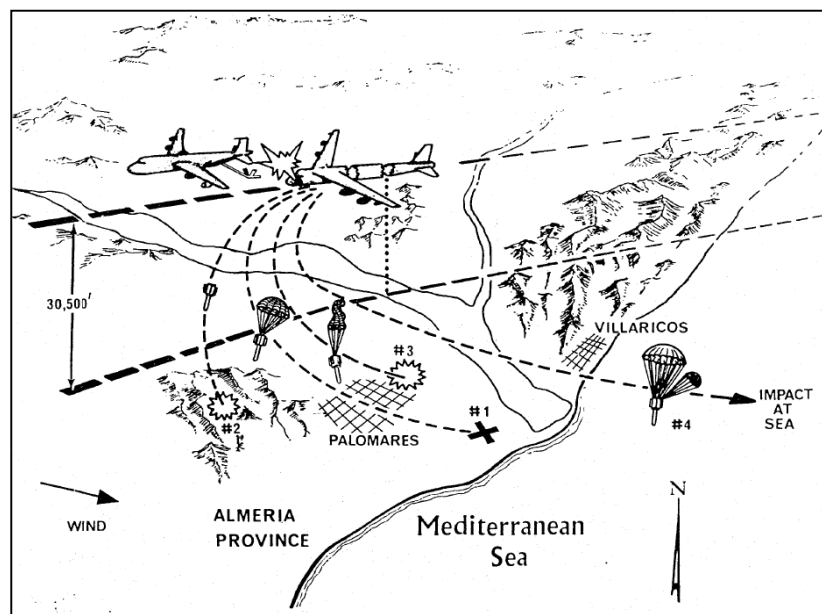


Figura 8: Dibujo esquemático que describe el accidente del 17 de enero de 1966 sobre Palomares (Cuevas del Almanzora, Almería) [32].

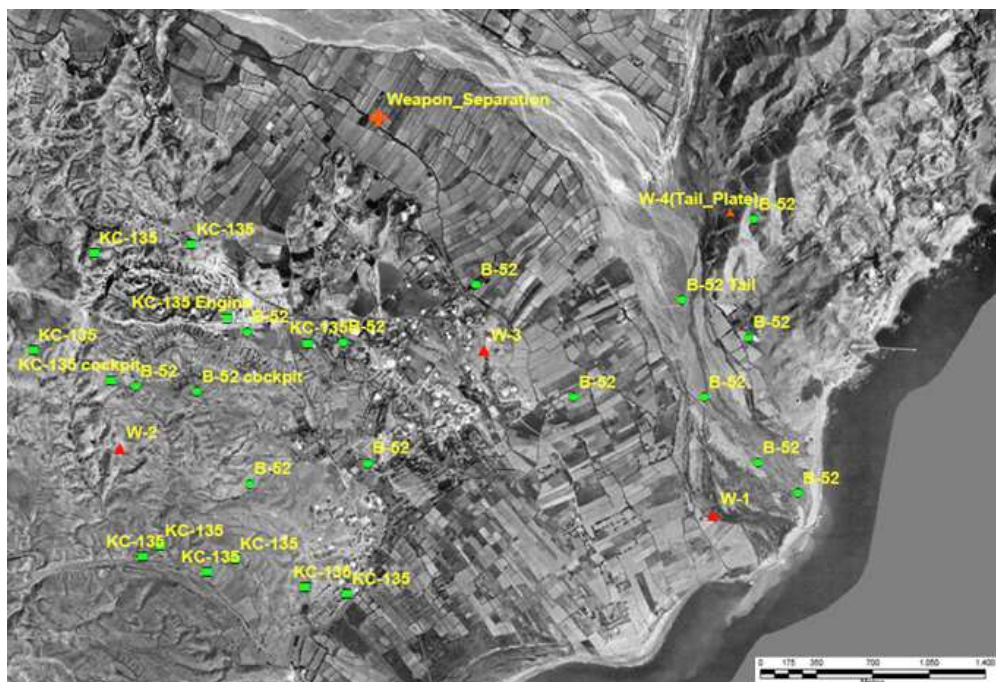


Figura 9: Localización del punto de separación de las bombas del avión, los puntos de impacto de las bombas (W-1, W-2, W-3, placa de la W-4) y otros restos (B-52 y KC-135) sobre una fotografía de la zona de 1956 [33].

Apenas una hora después del accidente, la Guardia Civil ya estaba presente en el lugar del accidente, asegurando la zona e informando a las autoridades españolas y de los EEUU, que denominaron el hecho con el código 'Flecha Rota' (Broken Arrow) que designa así los accidentes que involucran armas nucleares pero sin riesgo de originar una guerra nuclear. Esa misma tarde, se efectuaron varios reconocimientos aéreos y se ordenó el desplazamiento hasta Palomares de unas 400 personas de la Fuerza Aérea de EEUU

(FA-EEUU) desde las bases de Morón de la Frontera y Torrejón de Ardoz, para lo cual se comenzó la instalación del denominado 'Campamento Wilson', en honor del General de División Delmar E. Wilson de la FA-EEUU que estuvo al mando de las operaciones de búsqueda, limpieza y remedio. Al día siguiente ya se tuvieron las primeras evidencias de que los terrenos próximos a los puntos de impacto 2 y 3 presentaban elevadas contaminaciones α .

El 19 de enero, coincidiendo con la llegada de un equipo técnico de la Junta de Energía Nuclear (JEN), la FA-EEUU comenzó el primer reconocimiento radiológico que se efectuó con un monitor α Eberline PAC-1S (basado en un detector de centelleo cuyas lecturas se expresaban en cpm*) que se convertían en contaminación superficial de ^{239}Pu considerando que 130 cpm equivalen a $1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ [1] $\equiv 2.3 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-2}$ aplicando la actividad específica indicada en la Tabla I [2]. Con centro en los puntos de impacto 2 y 3 se definieron 24 radios formando ángulos entre sí de 15° hasta completar el círculo [2] (Figura 10). Sobre cada radio se tomaron medidas cada 25 m, extendiéndose 100 m adicionales cuando las lecturas eran $< 1000 \text{ cpm}$ ($\equiv 8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2} \equiv 18.4 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-2}$). Algunas medidas se alejaron hasta 1.5 km de los puntos de impacto y en algunas localizaciones se superó el valor máximo de lectura del equipo de $2\cdot 10^6 \text{ cpm}$ ($\equiv 15 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2} \equiv 35 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-2}$). Dado que el alcance en el aire de las partículas α del ^{239}Pu es del orden de 4 cm, era necesario acercarse lo más posible el monitor a la superficie irregular del terreno, lo que produjo un buen número de averías y lecturas erráticas que fue necesario reparar y depurar, respectivamente.

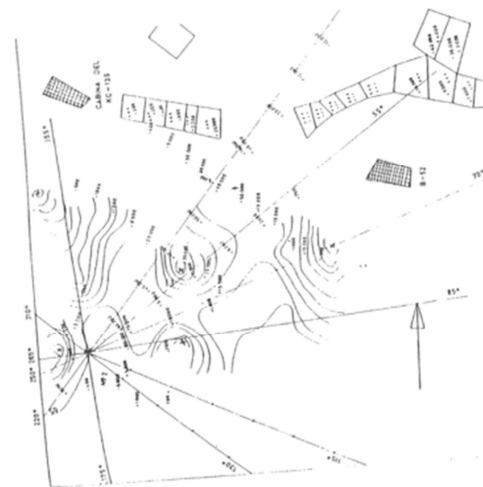


Figura 10, Izquierda: Monitor de centelleo para la detección de contaminación α Eberline PAC-1S. Derecha: Detalle del reconocimiento radiológico efectuado en direcciones radiales desde el punto de impacto de la bomba nº 2 [2].

En los días posteriores se fueron completando medidas intermedias y con fecha 11 de febrero de 1966 se dispuso del mapa que definía la 'Línea Cero' de contaminación (Figura 11) que delimitaba una superficie $\approx 226 \text{ ha}$. En la parte inferior de la Figura 11 se muestra la distribución de la actividad superficial de ^{239}Pu y en la Tabla VI se muestra la estimación del área inicialmente contaminada por ^{239}Pu . La Figura 11 muestra también la

*cuentas por minuto.

definición de las zonas de actuación durante la limpieza inicial por parte de los EEUU y que se ha mantenido desde entonces durante el seguimiento de la contaminación:

- **Zona 2.** Valle situado a 1.5 km al Oeste de Palomares flanqueado por pequeñas colinas de entre 50 y 75 m de altitud y que en 1966 llevaba años sin cultivar. Sin embargo, la dispersión de la contaminación alcanzó a las parcelas vecinas que sí estaban explotadas en regadío.
- **Zona 3.** Sita en el límite Este de Palomares, en 1966 era una parcela llana con varias terrazas sin cultivar, pero la dispersión de la contaminación alcanzó a las parcelas vecinas donde se cultivaban alfalfa, judías y tomates, estos últimos a punto de ser cosechados.
- **Zona 5.** Casco urbano que en 1966 apenas estaba pavimentado y que fue alcanzado por la pluma de la bomba nº 2; si bien la contaminación superficial fue entre 10 y 1000 veces inferior a las observadas en los puntos de impacto de las bombas.
- **Zona 6.** Detectada el 4 de febrero de 1966 en las colinas de Sierra Almagrera situadas en la ribera Este del río Almanzora y al Norte de Villaricos. Una superficie de 192 ha donde se encontraron puntos de contaminación máxima de hasta $120 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-2}$ en unas colinas rocosas de unos 100 m de altitud máxima, difícil acceso y sin explotación agrícola en aquel momento. El origen de la contaminación es dudoso por su relativa lejanía de los puntos de impacto nº 2 (a 5 km) y nº 3 (a 2 km) y la discontinuidad en el patrón de la actividad depositada.

Tabla VI: Estimación del área inicialmente contaminada por ^{239}Pu [34] [35].

Actividad α superficial / $\text{kBq}\cdot\text{m}^{-2}$	Área afectada / ha
> 1200	2.2
120 - 1200	17
12 - 120	87
< 12	120

A partir de los valores utilizados para la determinación de la 'Línea Cero', España y EEUU negociaron los criterios y metodología de actuación para los trabajos de remedio (Tabla VII) y recuperación de las zonas contaminadas. Dichos trabajos incluían: el lavado de fachadas, vallas y muros con agua a presión, la excavación de una trinchera en la zona 2 para almacén temporal de los materiales más contaminados previo a su acondicionamiento para su transporte a EEUU y el relleno de las parcelas excavadas con suelo fértil de la zona, además de la búsqueda de la bomba nº 4. Dichos trabajos en tierra se desarrollaron desde el 24 de enero hasta el 4 de abril de 1966, contando para ello con 700 efectivos militares y un centenar de vehículos y máquinas pesadas con base en el 'Campamento Wilson' [1]. Se definieron 844 parcelas (según su disposición en el terreno y propietario), siendo el área total remediada de 156 ha. Al finalizar los trabajos de limpieza, se ofreció a los propietarios de las parcelas y cultivos un "certificado de descontaminación", firmado por representantes de las Autoridades Españolas y de los EEUU donde se aseguraba que la limpieza había conseguido recuperar "...las condiciones de seguridad y fertilidad anteriores al 17 de enero de 1966". En la actualidad, no se dispone del registro de datos (sistemático o no) de las

Tabla VII: Criterios y resultado de las acciones de remedio realizadas en Palomares por la FA-EEUU entre el 22 de enero y el 10 de marzo de 1966 [1] [2].

Material	Actividad superficial / kBq·m ⁻²	Actuación	Resultado
Suelos accesibles	> 1 200	Retirada hasta 10 cm de profundidad y traslado a EEUU	832 m ³ provenientes de 2.2 ha
	12 - 1 200	Regado y arado hasta 30 cm de profundidad	115 ha
	< 12	Sin actuación	111 ha + 192 ha de la zona 6
Suelos de difícil acceso y sin explotar	< 180	Sin actuación	Sin datos
Vegetación y cultivos agrícolas	> 7	Retirada y traslado a EEUU	306 m ³ provenientes de 115 ha
	< 7	Quemado y enterramiento	9 250 t

Durante las acciones de remedio las tierras y vegetales más contaminados fueron acondicionados en la Zona 2 en 4 810 bidones de 0.2 m³ de capacidad, lo que supuso un total de 962 m³. Estos bidones se transportaron hasta la playa de Quitapellejos (Figura 12, Izquierda) para su embarque, el 24 de marzo de 1966, en el carguero USNS Lt. Boyce y traslado hacia el puerto de Charleston (EEUU), donde llegó el 5 de abril. Allí fueron examinados los bidones uno por uno para confirmar su buen estado y la ausencia de contaminación externa previo a su transporte por ferrocarril (30 vagones) hasta Savannah River Facility en Aiken (Carolina del Sur, EEUU), donde el 8 de abril fueron enterrados en una trinchera de unos 6 m de profundidad, excepto dos de ellos que se enviaron al Laboratorio Nacional de Los Álamos en Nuevo México (EEUU).



Figura 12, Izquierda: Carga de los bidones con material contaminado en la playa de Quitapellejos. En la esquina superior derecha se encuentra el Campamento Wilson. Derecha: Imagen de las bombas nº 1 (izquierda) y nº 4 (derecha) expuestas actualmente en el Museo Nacional de Ciencia e Historia Nuclear de Albuquerque (Nuevo México, EEUU).

La bomba nº 4 fue localizada el 15 de marzo en el Mar Mediterráneo a unos 8 km de la costa y 655 m de profundidad, pero su rescate fue muy complicado y se demoró hasta el 6 de abril, cuando fue izada, aparentemente intacta, desde 870 m de profundidad a bordo de

la nave para rescate submarino USS Petrel (ASR-14). En la actualidad las bombas nº 1 y 4 están expuestas en Albuquerque (Nuevo México, EEUU) como se muestra en la Figura 12, derecha.

Tras estos trabajos, se estableció un programa de vigilancia radiológica de la población, del medioambiente y de las producciones agropecuarias bajo diversos marcos de cooperación entre España y los EEUU, que se pueden englobar en el Proyecto Indalo iniciado por la JEN y que continúa realizando el CIEMAT. Según el CSN: *"...desde 1966, los programas de vigilancia realizados bajo el Proyecto Indalo no han mostrado ningún resultado que haga sospechar la existencia de morbilidad inducida por las radiaciones ionizantes y no hay ninguna evidencia de patología directamente relacionada con la dispersión de material radiactivo en el medio ambiente ocasionado por el accidente."* [33].

En los primeros años posteriores al accidente, el uso y explotación de las tierras cercanas a los puntos de impacto nº 2 y 3 fue muy esporádica por el bajo rendimiento agrícola y solo servía para el pastoreo de algunos rebaños de ovejas y cabras. Ya en la década de 1980 la situación cambió por la aplicación de técnicas de explotación intensiva (riego por goteo), lo que indujo la construcción en 1986 y 1988 de dos balsas de regadío con una capacidad total de casi 0.5 hm³. Las balsas están sitas justo entre la cabecera del valle de la zona 2 y el cementerio de Palomares. A este movimiento de tierras hay que añadir el producido por la formación de terrazas para su explotación agrícola en aquellas parcelas que presentaban lomas o colinas. En la zona 3 se construyó una instalación ganadera y se cultivó mediante la creación de terrazas, incluso encima del punto de impacto se construyó una vivienda sobre material de relleno añadido. Además, el Ayuntamiento de Vera recalificó como urbanizables varias parcelas del sur del valle de la zona 2, lo que fue el inicio de un nuevo desarrollo inmobiliario de la comarca. La zona 6 continuó sin modificación alguna en su uso respecto a los años 1960, es decir, el pastoreo esporádico de algunos rebaños.

Es en el año 2003 cuando el CIEMAT elabora el Plan de Investigación Energética y Medioambiental en Materia de Vigilancia Radiológica en Palomares (PIEM-VR) que, informado favorablemente por el CSN el 11 de diciembre de 2003 [3], fue aprobado por el Consejo de Ministros el 17 diciembre de 2004, decretando la restricción total y parcial de uso de los terrenos. A partir de esa fecha se inició un proceso de expropiación forzosa de ≈10 ha que comprendía los terrenos afectados y las proximidades de los puntos de impacto de las bombas números 2 y 3. Posteriormente, y como consecuencia del desarrollo del PIEM-VR el Consejo de Ministros aprobó, con el informe favorable del CSN de 2 de julio de 2007, una ampliación del alcance de PIEM-VR a 30 ha; esta ampliación incluía las fincas colindantes a las ya expropiadas en las Zonas 2 y 3 y los terrenos afectados en Sierra Almagrera (Zona 6).

1.3.1 Descripción del escenario

Palomares es una pedanía del municipio de Cuevas del Almanzora en la provincia de Almería, en el SE de la Península Ibérica. Sus coordenadas geográficas son aproximadamente latitud 37°15' N y longitud 1°47' E, que se expresan en el sistema de coordenadas universal transversal de Mercator (Universal Transverse Mercator, UTM [36]) como 30S-6 006 500-4 123 000 (datum WGS-84). El área afectada por el accidente también

alcanzó por el E a la pedanía de Villaricos situada a orillas del mar Mediterráneo y por el O al término municipal de Vera donde se encuentra el punto de impacto nº 2 aunque la contaminación se dispersó mayoritariamente hacia el NO.

Los datos meteorológicos registrados en el aeropuerto de Almería [37] son representativos de la climatología del área de interés ya que es muy similar en toda la provincia, es decir:

- La temperatura media anual es de 19 °C, con medias estivales entre 26 y 32 °C y medias invernales entre 8 y 14 °C.
- El valor de irradiación solar directa en la ciudad de Almería es de $3.71 \text{ kW}\cdot\text{h}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ [38], el más alto en Europa, y además cuenta con 2 994 h de sol anuales y 108 d despejados al año.
- Las precipitaciones anuales son escasas ($200 \text{ dm}^{-3}\cdot\text{m}^{-2}$) y distribuidas a lo largo del año en sólo 25 d, 7 de los cuales son tormentas, lo que origina crecidas y avenidas de los torrentes y arroyos cuyos cauces se encuentran normalmente secos.

En consecuencia, el clima de la provincia de Almería es Mediterráneo subtropical con características secas o semiáridas, siendo la vegetación autóctona de la zona el acebuche silvestre (*Olea Europea*), el esparto (*Stipa tenacísima*), los bosquetes de azufaiños (*Ziziphus lotus*) y rascamoños (*Salsola verticilata*) [39]. En el momento del accidente, las tierras próximas a los puntos de impacto nº 2 y 3 estaban sin cultivar y presentaban este tipo de vegetación.

La geología y orografía del área afectada se puede dividir en dos partes bien diferenciadas y separadas por el lecho del río Almanzora formado por gravas y arenas [40]:

- Al O del río Almanzora (zonas 2, 3 y 5), las formaciones más antiguas corresponden al Terciario Messiniense y son margas arenosas, areniscas y niveles de yeso que en el Plioceno dieron lugar a conglomerados y una pequeña zona con dacitas y riodacitas. Ya en el Cuaternario se formaron limos y arcillas indiferenciados y arenas de playa en la orilla del mar (Playa de Quitapellejos). Estos suelos corresponden al horizonte C edafológico formado por la disgregación mecánica de la roca madre y sin apenas alteración química. Los minerales por orden de abundancia son: cuarzo (39 %), calcita (30 %), plagioclasa (13 %), dolomita (7 %) clorita (6 %), mica (4 %) y yeso (0.5 %), este último particularmente abundante para tamaños granulométricos superiores a 250 μm . En consecuencia, la naturaleza de estos suelos es silicio-carbonatada, siendo sus mayores componentes SiO_2 (44 %), CO_3^{2-} (16 %) , Al_2O_3 (12 %), CaO (15 %), Fe_2O_3 (3.8 %), K_2O (2.6 %), MgO (2.1 %), FeO (0.7 %) y TiO_2 (0.6 %) [41]. La relación $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ es de 0.18 lo que indica un ambiente oxidante y las siguientes transformaciones mineralógicas: formación de óxidos hidratados, degradación de las cloritas y alteración superficial de los minerales de Fe y Ti. La solución de estos suelos en agua presenta un potencial redox oxidante (entre 312 - 344 mV) y un pH entre 7.6 - 8.4 [34]. Su orografía consiste en llanos extensos con pequeñas colinas y altozanos que alcanzan una altitud máxima

de 80 m, cuya explotación agrícola en el pasado consistió en cultivos de secano, como maíz, cebada y alfalfa, más algunos productos de temporada como tomates, habas, alcachofas y frutales cítricos. La introducción del riego por goteo y los invernaderos transformaron el relieve en llanos o terrazas para su explotación agrícola como ha ocurrido en la zona 2, donde la construcción de las balsas de regadío supuso la desaparición de varias colinas en la cabecera del valle. El rendimiento agrícola aumentó considerablemente y en la actualidad se cultiva sandía, melón, pepino, calabacín, pimiento y lechuga.

- Al E del río Almanzora (zona 6) se encuentra la Sierra Almagrera que forma parte del complejo Alpujarride con origen en el Cámbrico-Pérmico que se extiende unos 8.5 km hacia la provincia de Murcia donde se encuentra su máxima altitud en el pico Tenerife (366 m). En la comarca de interés forma una sucesión de colinas y barrancos con una altitud máxima de 120 m dejando al Sur el casco urbano de Villaricos. Sus minerales mayoritarios son micaesquistos grafitosos, esquistos cuarcíticos y cuarcitas, aunque contiene filones de minerales de Pb y Ag, como la galena argentífera, que han sido explotados desde la antigüedad hasta la década de 1940, quedando aún en el terreno numerosos pozos y vestigios de esta actividad. Sus componentes químicos son SiO₂ (75 %), Al₂O₃ (20 %) y PbS (~ 1 %). En estas sierras la vegetación de gran porte se encuentra representada por los azufaifares, que ocupan las principales ramblas y vaguadas, y por las comunidades de cornical, que aparecen en los acantilados con influencia marina. La vegetación madura es un espinal dominado por especies como el espino negro, el acebuche, el bayón, la efedra y las esparragueras, siendo muy escaso el lentisco. La presencia de coscoja, madreselva, aladierno o la rubia indican que en el pasado pudieron existir condiciones ambientales distintas a las actuales que permitirían el desarrollo de especies de mayor porte; aunque, transcurrido el tiempo, las condiciones son otras. En la actualidad está siendo considerada como Zona Especial de Conservación [42] y no tiene más aprovechamiento que alguna explotación apícola y el pastoreo ocasional de ganado ovino y caprino, aunque en los últimos años hubo interés para alguna iniciativa inmobiliaria.

1.3.2 Forma fisicoquímica de la contaminación

La explosión de un dispositivo que contiene material radiactivo o nuclear (Pu y/o U) produce la alteración, pulverización y dispersión de dicho material [43] en formas discretas que por su tamaño pueden ser coloides (1 – 450 nm), partículas (0.5 µm – 2 mm) y fragmentos (> 2 mm) [44]. Cuando la actividad de la partícula o fragmento supera los 10 kBq se emplea el calificativo 'caliente' para indicar que es preciso adoptar precauciones desde el punto de vista de la protección radiológica.

En el accidente de Palomares la disgregación del material nuclear en partículas y fragmentos fue causada por la acción mecánica debida a las detonaciones del explosivo químico convencional, tanto en vuelo como al impactar en el suelo. Además, se originaron

pequeños incendios que aceleraron la oxidación del Pu y el U, produciendo partículas muy finas de óxidos refractarios.

Durante el desarrollo del Proyecto Indalo, se asumió que las muestras de suelo de Palomares presentaban una distribución homogénea de la contaminación radiactiva atribuible a las partículas más finas que se repartían uniformemente en el volumen de la muestra. Aunque esta suposición está avalada en la mayoría de las muestras de suelo analizadas, los estudios de fraccionamiento de las muestras más activas evidencian la heterogeneidad en la distribución de actividad, lo que es un indicio de partículas discretas que contienen la mayor parte la actividad de la muestra [45] [46].

La técnica para aislar las partículas radiactivas más común empleada ha sido la división no destructiva y sucesiva de muestras de suelo en submuestras de menos de 5 mm de espesor, que luego han sido analizadas en sistemas de espectrometría y con detectores de semiconductor de Ge de alta pureza (HP Ge) para determinar la actividad de ^{241}Am mediante el análisis de la línea de emisión de 59.5 keV. El proceso se ha repetido reduciendo el tamaño de la submuestra hasta conseguir aislar la partícula, cuyos tamaños han variado entre 10 y 500 μm [47] [48] [49].

Para facilitar el proceso de separación, en ocasiones las muestras de suelo han sido tamizadas en seco para obtener las fracciones granulométricas con distintos intervalos de tamaños de partícula (desde 40 μm hasta 2 mm [46]). Esta técnica se prefiere al tamizado en húmedo para prevenir la disolución de agregados y la lixiviación del Pu(VI) que pudiera estar presente en la superficie de las partículas (lo cual originaría un residuo líquido radiactivo). Las fracciones granulométricas obtenidas eran analizadas mediante autorradiografías que permitían detectar el tamaño y número de las partículas radiactivas; si bien, con posibles interferencias de los componentes radiactivos naturales como el ^{40}K . La fragilidad de las partículas ha quedado demostrada ya que varias se fracturaron durante las preparaciones produciendo varios pedazos y polvo más fino que se confirmó como radiactivo en sus autorradiografías y análisis por espectrometría γ .

Las partículas radiactivas aisladas también fueron analizadas mediante otras técnicas no destructivas como: microscopía óptica polarizada [48], microscopía electrónica de barrido (MEB) con espectroscopía de energías dispersivas de rayos X (EDS) [47] [48] [49] [50], espectrometría de masas de iones secundarios (SIMS) [49] y microabsorción de rayos X de la radiación de sincrotrón cerca del borde de estructuras ($\mu\text{-XANEX}$) [51]. Las conclusiones de estos trabajos se resumen a continuación:

- El análisis organoléptico de las partículas encontradas presenta una estructura de granos aglomerados (tipo racimo de uvas) con una gama de colores amarillos, plateados, ocres y verdes que son característicos del PuO_2 y PuO_{2+x} [48]. Dicho granulado se corresponde con diámetros de tamaño de partículas en el intervalo de 0.5 - 1 μm [51].
- Estas partículas radioactivas están sólidamente agregadas a matrices inertes de los componentes mayoritarios del suelo local (como SiO_2 , CO_3^{2-} y Al_2O_3) de modo que el diámetro del tamaño del agregado oscila entre de 200 - 300 μm [48] [50].

- Las partículas radioactivas están constituidas por óxidos refractarios de U y Pu entrelazados y con diámetro de tamaño de partícula entre 1 – 50 μm . La razón másica Pu/U en estas partículas varía entre 0.5 - 1.5 [46] [49] [47].
- La caracterización con $\mu\text{-XANEX}$ [51] permitió comprobar que la especie oxidada predominante es UO_2 , con un incremento de la oxidación a U_3O_8 en las zonas más alteradas, en contacto con el ambiente. El Pu presenta el estado de oxidación similar al del U, es decir PuO_2 , pero también están presentes en menor proporción Pu_2O_3 y PuO_2^+ , ligados a la disponibilidad de O durante el proceso de reacción.
- En las fases oxidadas se han encontrado acumulaciones de Ga [48], lo que se justifica como consecuencia de utilizar este elemento para favorecer la formación de la fase $\text{Pu}(\delta)$ a temperatura ambiente.
- Se ha observado la existencia de una relación entre el tamaño de la partícula, su composición y la actividad. La relación observada es que la actividad de las partículas radiactivas aisladas es proporcional al cubo de su diámetro de partícula, dependiendo también de la matriz a la que está asociada [43]. La actividad de estas partículas varía entre 1 - 10 kBq.

Tras su dispersión, depósito en seco en el suelo y posterior alteración por el medio ambiente las partículas radiactivas se adhirieron a las del terreno formando agregados muy cohesionados, que resulta difícil separar por medios físicos y con muy escasa reactividad química. Los estudios desarrollados durante el Proyecto Indalo [39] demuestran que:

- El transporte vertical de las partículas radiactivas es nulo ya que la velocidad de migración vertical en los primeros 5 cm del suelo varía entre 0.001 y 0.02 $\text{cm}\cdot\text{a}^{-1}$, lo que supone que la contaminación reside en esa capa entre 250 - 3 500 a.
- Si bien las partículas radiactivas están constituidas por un 99 % de Pu y Am, no hay constancia de interacción geoquímica con el medio; sólo en situaciones excepcionales (escorrentías o por la alteración mecánica del terreno) se observa un incremento de oxidación superficial, favoreciendo la formación de especies con una mayor velocidad de disolución.

En consecuencia, el transporte de la contaminación depositada superficialmente tras el accidente se puede considerar de movilidad limitada por mecanismos físicos como la alteración directa del suelo para usos agrícolas o urbanísticos, el arrastre mecánico en escorrentías y, sobre todo, la resuspensión.

El factor de resuspensión se define como el cociente de la concentración del contaminante en el aire dividido por su concentración en la superficie del terreno. En el caso de Palomares y según se refleja en la bibliografía [39] [52], el factor de resuspensión de la contaminación por Pu es del orden de 10^{-9} - 10^{-10} m^{-1} . Aunque este valor es aparentemente pequeño, la resuspensión es el principal mecanismo originador de la contaminación ambiental por $^{239+240}\text{Pu}$, del orden de $\mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, que sólo se constata en determinadas zonas de Palomares donde las condiciones de velocidad del viento son > 7 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ [53], lo que ocurre en menos del 7 % del cómputo de tiempo anual [54].

1.3.3 Fracciones y relaciones isotópicas características

La relación atómica de dos isótopos se define como el cociente del número de átomos de uno de ellos dividido por el número de átomos del otro. Si dichos números de átomos se multiplican por el número másico del isótopo correspondiente, se obtiene la relación isotópica en términos de masa, de la que se puede calcular la relación isotópica en términos de actividad multiplicándola por el cociente de las actividades específicas de los isótopos.

Las relaciones isotópicas de ^{238}Pu y ^{240}Pu respecto a ^{239}Pu son características del origen de la contaminación radiactiva como se muestra en la Figura 13, permitiendo su identificación y procedencia [55] [56]. A partir de la Tabla III se calculan las relaciones atómicas para el típico Pu grado arma $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0.0004$ y $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0.06$, por ejemplo:

- El vertido accidental de combustible nuclear militar en Kyshtym (antigua URSS, hoy Kazajistán, 1957) parece indicar que este material (producido en un reactor de U natural moderado con grafito) era de excelente calidad para su aplicación militar ya que su fracción en masa de ^{239}Pu sería superior a 97 % ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} < 0.03$, $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0.00003$).
- Las explosiones atmosféricas de bajo rendimiento (< 100 kt TNT, como las producidas en Semipalatinsk) incrementan las relaciones atómicas, pero se quedan a un orden de magnitud de las atribuidas al poso radiactivo global debido a las pruebas estratosféricas, donde el flujo neutrónico durante la explosión aumenta la presencia de ^{240}Pu .
- La contaminación debida a las pruebas troposféricas de artefactos termonucleares Mike y Castle Bravo (Islas Marshall, 1952 y 1954, respectivamente) se caracterizan por presentar una relación atómica $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ muy elevada y una relación atómica $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ muy baja.
- Los vertidos directos de residuos en el océano Atlántico desde la instalación de reproceso de combustible nuclear en Sellafield (Reino Unido) muestran relaciones atómicas más elevadas.
- La contaminación derivada del accidente de Chernobyl (antigua URSS, hoy Ucrania, 1986) se debe a combustible nuclear con elevado grado de quemado donde $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}=0.0034$ y $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}=0.56$.
- Por último, se presentan los datos de los accidentes de Palomares y Thule en 1968, donde cuatro bombas termonucleares similares se perdieron en el Océano Ártico, cerca de la costa Oeste de Groenlandia, en un aterrizaje de emergencia frustrado de un B-52 que se había incendiado durante el vuelo [55].

La determinación experimental de las relaciones isotópicas se efectúa con técnicas espectrométricas que permiten identificar la cantidad de cada isótopo presente en una muestra. Debido a la proximidad en energías de las radiaciones α de ^{239}Pu y ^{240}Pu (Tabla II), su resolución en las medidas de actividad por espectrometría α requiere el uso de técnicas de deconvolución de espectros [57]. Por ello es común referir las relaciones de actividad relativas a la suma de actividades, denotándolo como $^{239+240}\text{Pu}$. Sin embargo, los fotones de 59.5 keV del ^{241}Am pueden ser detectados directamente mediante detectores de espectrometría γ .

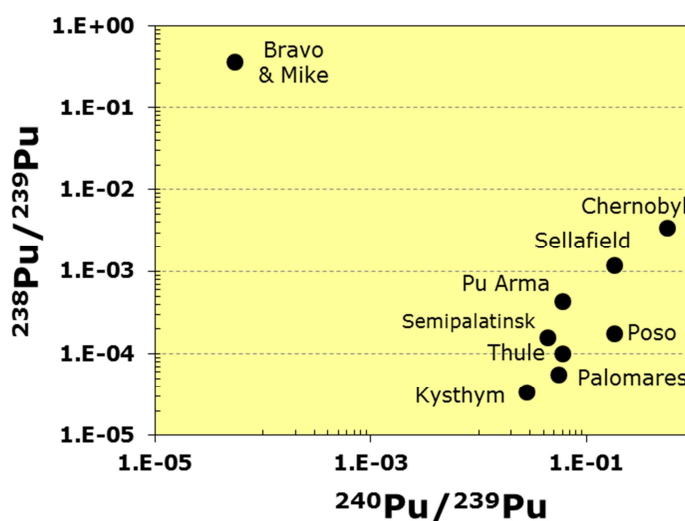


Figura 13: Relaciones atómicas típicas para varias situaciones [55] [56] comparadas con el Pu grado arma y los resultados de las muestras de suelos de Palomares.

El método más empleado para la determinación de la actividad de los isótopos de Pu y Am en muestras de suelos se basa en la disolución total de las muestras (suelos, partículas aisladas, otras) con diversas técnicas radioquímicas (RQ) (por ejemplo: extracción, adición de trazadores, concentración, separación con resinas de intercambio iónico, electrodeposición) y posterior análisis mediante espectrometría α (EA), centelleo líquido (CL) para el ^{241}Pu , espectrometría de masas con fuente de plasma inducido (ICP/MS) y espectrometría de masas con aceleradores (AMS). También se ha empleado la espectrometría de rayos X y la espectrometría de fotones de baja energía (LEPS: Low Energy Photon Spectrometry) para el análisis no destructivo de muestras delgadas de tierras [58].

En la Tabla VIII se muestra una recopilación de las relaciones isotópicas de actividad relacionadas con el accidente de Palomares y publicadas en los últimos 25 años que, en general, muestran gran concordancia temporal entre ellos. Estos resultados experimentales permiten calcular las relaciones isotópicas en actividad respecto a la actividad de ^{239}Pu y estimar sus valores en el momento del accidente mediante el ajuste de su evolución en función del tiempo (Figura 14). Los valores numéricos de este ajuste para 1966 y varios periodos relevantes para este trabajo se presentan en la Tabla IX, donde se observa que la razón en actividad $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0.220 \pm 0.002$ es prácticamente constante en el tiempo y confirma el grado arma del Pu. También es constante la razón $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu} = 0.31 \pm 0.1$ en el periodo 2006 - 2066, lo que permite emplearla como factor de escala para determinar la actividad de los ^{239}Pu y ^{240}Pu sin necesidad de correcciones por el tiempo transcurrido.

Tabla VIII: Valores de las razones isotópicas de actividad, indicando el año de referencia para el que fueron calculadas y la metodología de análisis.

Razón Isotópica	Razón de actividad	Año de ref. medida	Observaciones
$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	0.22 ± 0.01	1997	1 muestra de suelo superficial, RQ+EA [59]
	0.21 ± 0.01	1997	2 muestras de suelos y 2 muestras de sedimentos costeros, RQ+EA [57]
	0.23 ± 0.01	1998	4 muestras de suelo superficial y 2 muestras de sedimentos costeros, RQ+EA [60]
	0.21 ± 0.03	2001	2 muestras de suelo superficial, RQ+EA [61]
	0.219 ± 0.002	2006	1 partícula, RQ+ICP/MS [49]
	0.240 ± 0.002	2006	1 muestra de suelo, RQ+AMS [62]
$^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	0.027 ± 0.002	1966	1 muestra de suelo superficial, RQ+EA [59]
	0.021 ± 0.001	1994	1 muestra de suelo superficial, RQ+EA [59]
$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	0.022 ± 0.003	1966	45 muestras de suelo superficial y sondeos, RQ+EA [39]
	0.017	1997	1 muestra de suelo superficial, RQ+EA [59]
	0.015 ± 0.002	2001	2 muestras de suelo superficial, RQ+EA [61]
	0.017 ± 0.002	1998	4 muestras de suelos y 7 muestras de sedimentos costeros, RQ+EA [60]
	0.016 ± 0.001	2002	45 muestras de suelo superficial y sondeos, RQ+EA [39]
	0.017 ± 0.001	2003	5 partículas, RQ+EA [46]
	0.017 ± 0.002	2006	5 muestras de suelo superficial, RQ+EA [47]
	0.012 ± 0.002	2006	1 partícula, RQ+ICP/MS [49]
	0.017 ± 0.002	2008	5 partículas, RQ+EA [48]
0.017 ± 0.001	2009	307 muestras de suelo superficial y sondeos, RQ+EA [63]	
$^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$	3.10 ± 0.02	2008	307 muestras de suelo superficial y sondeos, RQ+EA+CL [63]
$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	0.16 ± 0.04	1966	45 muestras de suelo superficial y sondeos, RQ+EA [39]
	0.15 ± 0.04	1988	Muestreo de algas (<i>Fucus spiralis</i>), RQ+EA [64]
	0.21 ± 0.02	1989	Muestreo de algas (<i>Fucus spiralis</i>), RQ+EA [64]
	0.23 ± 0.04	2002	5 partículas, RQ+EA [46]
	0.24 ± 0.05	2002	45 muestras de suelo superficial y sondeos, RQ+EA [39]
	0.24 ± 0.02	2008	5 partículas, RQ+EA [48]
	0.25 ± 0.02	2008	879 muestras de suelo superficial y sondeos, LEPS [58]
$^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	8.2 ± 0.8	1966	1 muestra de suelo superficial, RQ+EA+CL [59]
	2.14 ± 0.22	1994	1 muestra de suelo superficial, RQ+EA+CL [59]
	1.04	2006	1 partícula, RQ+ICP/MS [49]
$^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	6.3	1966	1 partícula, RQ+ICP/MS [49]
	6.1 ± 0.5	1966	2 muestras de suelos y 2 muestras de sedimentos costeros, RQ+EA+CL [57]
	6.7 ± 0.2	1966	4 muestras de suelos, RQ+EA+CL [60]
	2.0 ± 1.1	1983	3 muestras de suelos, RQ+EA+CL [65]

Las relaciones isotópicas en masa para el U y el Pu presentadas en la Tabla X demuestran que las partículas radiactivas dispersadas en el accidente son una mezcla de Pu grado armas y U enriquecido al 20 % en ^{235}U con razón másica Pu/U ~ 0.8 . Sin embargo, dadas las diferencias de varios órdenes de magnitud entre sus actividades específicas, la razón en actividad Pu/U es del orden de 8 000 [48], lo que significa que las consecuencias radiológicas de la contaminación de los suelos se deberán fundamentalmente a la desintegración radiactiva del Pu y sus descendientes (^{241}Am principalmente).

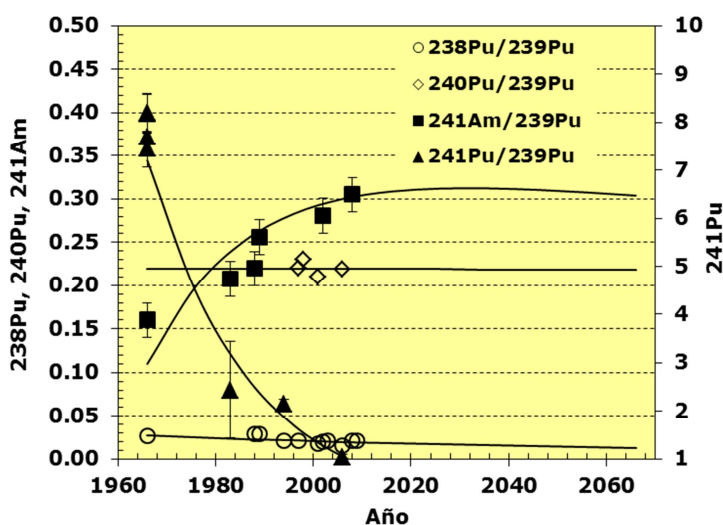


Figura 14: Relaciones isotópicas en muestras de Palomares. Las barras de error corresponden al 95 % de confianza (inapreciables para ^{238}Pu y ^{240}Pu). Las líneas indican la evolución de las relaciones isotópicas según la Tabla IX.

A partir de las relaciones isotópicas, se pueden calcular las fracciones isotópicas en masa y actividad del combustible nuclear dispersado en el momento del accidente y su evolución con el paso del tiempo (Figura 15). Las fracciones isotópicas en masa calculadas para 1966 corresponden claramente con Pu grado armas, con más de un 93.5 % de ^{239}Pu , menos de 6 % de ^{240}Pu y un contenido de ^{238}Pu inferior al 0.01 % de la masa total. En la Figura 13 se incluye el punto correspondiente a sus relaciones atómicas $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ y $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$. El contenido másico de ^{241}Pu es sólo 0.4 % pero el ^{241}Am generado ya era 0.2 %, lo que indica que la extracción del Pu se produjo entre 1956 y 1960 [49] [63] [65]. Con el tiempo, la fracción en masa de ^{241}Pu se reduce un factor 40 en los primeros 50 años, en tanto que su descendiente el ^{241}Am alcanza su máxima fracción másica en 0.53 % transcurridos 72 a, es decir aproximadamente en el año 2 030. El ^{238}Pu reducirá su fracción másica a la mitad en los primeros 100 a y las fracciones másicas de ^{239}Pu y ^{240}Pu apenas variarán en siglos dadas sus largas vidas medias. En contraste, más del 84 % de la actividad total del combustible nuclear en 1966 se debía al ^{241}Pu (emisiones β) y menos del 12 % al ^{239}Pu (emisiones α). Con el paso del tiempo la situación se invierte y en 2020 más del 90 % de la actividad será debida a emisiones α .

Tabla IX: Estimación de las relaciones isotópicas de actividad relativas a ^{239}Pu en el momento del accidente y su evolución. Las incertidumbres se expresan con un nivel de confianza del 95 %.

Fecha de referencia	$\Delta t / a$	$^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$
17/01/1966	0	0.027 ± 0.002	0.220 ± 0.002	7.2 ± 0.9	0.11 ± 0.02
17/01/1991	25	0.022 ± 0.002	0.220 ± 0.002	2.1 ± 0.2	0.27 ± 0.02
17/01/2006	40	0.020 ± 0.002	0.219 ± 0.002	1.0 ± 0.1	0.30 ± 0.02
17/01/2016	50	0.018 ± 0.002	0.219 ± 0.002	0.65 ± 0.06	0.31 ± 0.02
17/01/2041	75	0.015 ± 0.002	0.219 ± 0.002	0.19 ± 0.02	0.31 ± 0.02
17/01/2066	100	0.012 ± 0.002	0.218 ± 0.002	0.059 ± 0.005	0.30 ± 0.02

Tabla X: Valores de las razones atómicas, indicando el año de referencia en la que se realizaron las medidas.

Razón Isotópica	Razón atómica	Año de ref. medida	Observaciones
$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	0.250 ± 0.002	2006	1 partícula, ICP/MS [49]
	0.185	2007	1 partícula, ICP/MS [51]
	0.185 ± 0.004	2007	1 partícula, ICP/MS [47]
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	0.0023 ± 0.0004	2007	1 partícula, ICP/MS [51]
	0.0010 ± 0.0002	2008	1 partícula, RQ+EA [48]
$^{239}\text{Pu}/^{235}\text{U}$	0.78 ± 0.14	2007	1 partícula, ICP/MS [51]
$\text{Pu}_{\text{total}}/\text{U}_{\text{total}}$	0.8 ± 0.2	2008	1 partícula, RQ+EA [48]

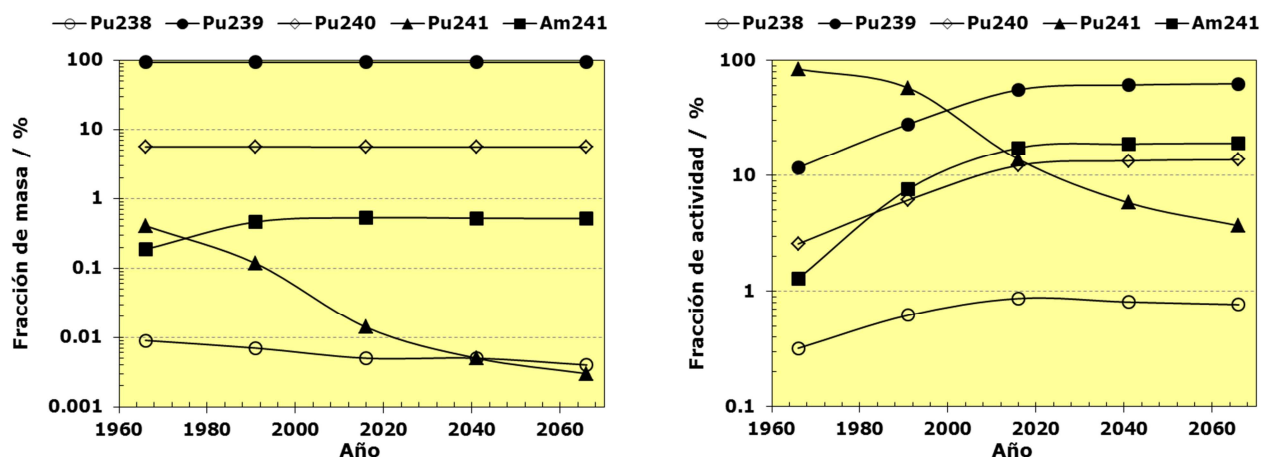


Figura 15: Evolución de las fracciones isotópicas en masa y actividad en muestras de Palomares.

1.4 Caracterización radiológica de las zonas

Las acciones de remedio en zonas contaminadas con radionucleidos forman parte de las normas básicas de protección radiológica establecidas por las regulaciones de la Unión Europea (en adelante UE) [66] y la OIEA [67]. La toma de decisiones en los planes de remedio debe basarse en: la información disponible, la generación de información complementaria que aún sea necesaria, la evaluación de los datos frente a unos criterios de aceptación, la viabilidad social y económica de las alternativas de actuación y la verificación final de los trabajos efectuados.

La herramienta principal para cada una de esas fases es la caracterización radiológica de la zona, que se puede entender como todas las operaciones destinadas a obtener información y datos relativos a las distribuciones en el terreno afectado de las propiedades físicas, químicas y radiológicas de los contaminantes radiactivos. Esta información debe ayudar a planificar, si fuera necesario, las acciones de remedio proporcionando estimaciones del tipo y volumen de residuos radiactivos que se producirían, recomendaciones sobre aspectos de protección radiológica y seguridad física y una valoración razonable de los costes asociados [68].

Se pueden distinguir varios tipos de caracterización radiológica en función del momento y del alcance de la contaminación radiactiva [69]:

- Descubrimiento de la contaminación: consecuencia de algunas medidas discretas generalmente en las zonas más contaminadas en base a información histórica o sospechas contrastadas.
- Confirmación y alcance preliminar de la contaminación: medidas sobre el terreno con objeto de establecer en el espacio los niveles de protección al público y a los trabajadores.
- Caracterización primaria: medidas sistemáticas sobre el terreno y tomas de muestras con objeto de determinar el alcance espacial de la contaminación, incluyendo la profundidad en el suelo.
- Caracterización secundaria: basada en las anteriores y decidida la necesidad de emprender las acciones de remedio, son medidas complementarias relacionadas con las técnicas de ingeniería a implementar, incluyendo la gestión de los residuos radiactivos generados.
- Vigilancia radiológica durante las actuaciones de remedio: medidas realizadas durante los trabajos en los terrenos descontaminados y en los trabajadores para asegurar que se cumplen los objetivos de dosis previamente establecidos.
- Verificación final: medidas realizadas una vez acabados los trabajos de remedio con objeto de documentar la situación radiológica final y describir los escenarios y limitaciones que son aceptables para el uso de los terrenos descontaminados.

1.4.1 Criterios radiológicos para la restricción de uso de los terrenos

En la práctica resulta imposible recuperar toda la contaminación radiactiva que ha afectado a grandes superficies y que ha podido penetrar en el suelo a cierta profundidad. Por ello, en los planes de acción de remedio se establecen como objetivos cuantitativos a alcanzar distintos criterios radiológicos que se relacionan con las condiciones de uso para los terrenos tras las acciones de remedio. Estos criterios se relacionan con el riesgo que resulta de la exposición de las personas y el medioambiente a la radioactividad remanente que no es posible extraer por motivos técnicos o socioeconómicos.

La exposición del ser humano a las radiaciones ionizantes puede ser externa (irradiación desde una fuente de radiación que está fuera del cuerpo) o interna (incorporación de radiactividad dentro del cuerpo por inhalación o ingestión). Para relacionar la exposición a las radiaciones ionizantes tanto externa, como interna, con los riesgos de aparición de efectos biológicos se emplea la magnitud dosis efectiva, E , cuya unidad es el Sievert ($1 \text{ Sv} = 1 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}$) y que se define como una suma de las dosis absorbidas en varios órganos del cuerpo humano, $D_{T,R}$, ($1 \text{ Gy} = 1 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}$), sopesadas con factores de ponderación adimensionales que se relacionan con la radiosensibilidad de cada órgano (w_T) y la eficiencia radiobiológica de las distintas radiaciones ionizantes (w_R) [70] [71]:

$$E = \sum_T w_T \sum_R w_R D_{T,R} \quad \langle 8 \rangle$$

Los factores de ponderación de los órganos están normalizados, es decir, la suma de todos ellos es igual a la unidad ($\sum_T w_T = 1$), siendo los órganos más radiosensibles la médula ósea, el colon, el pulmón, el estómago o las mamas con $w_T = 0.12$. Los factores de ponderación para la radiación varían desde $w_R = 1$ para fotones, muones y electrones de cualquier energía hasta $w_R = 20$ para partículas α , fragmentos de fisión y núcleos pesados.

La dosis efectiva considera las dosis debidas tanto a la irradiación externa, como la interna y se emplea para establecer los límites de dosis y criterios de intervención [72] por los organismos reguladores nacionales. Por ejemplo, el límite de dosis efectiva es $1 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ para los miembros del público en general y este fue el valor considerado por el CSN en 2003 [3], ratificado en 2007 [73] y 2008 [74], para establecer los criterios dosimétricos y sus derivados para determinar el control del uso de terrenos en Palomares:

- **Restricción total** para las actividades en los terrenos que supongan un nivel de dosis residual igual o superior a $5 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$. La concentración derivada de $^{239+240}\text{Pu}$ de esta dosis es $25 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.
- **Restricción parcial y realizar estudios adicionales** cuando las actividades puedan dar lugar a una dosis residual de $1 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$. La concentración derivada de $^{239+240}\text{Pu}$ de esta dosis es $5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.

Los criterios derivados se expresan en términos de concentración de actividad de $^{239+240}\text{Pu}$, ya que, además de ser los isótopos más radiotóxicos, también son los de mayor vida media. Sus valores coinciden con los empleados en el Reino Unido [75] para suelos mezclados homogéneamente en los primeros 30 cm por procesos naturales y actividades agrícolas, que se corresponde con la situación de las zonas contaminadas en Palomares. Se estima que $\approx 70\%$ de la dosis efectiva potencial se debería a la inhalación por resuspensión de la contaminación, el 25% se debería a la ingestión de alimentos locales contaminados, menos de un 3% se debería a la irradiación externa (sólo para ^{241}Pu y ^{241}Am) y el resto a ingestiones inadvertidas [75].

Todos los isótopos presentes en la contaminación de los suelos de Palomares son de difícil medida debido a que la medida directa de su actividad no es posible dado el escaso alcance de sus principales emisiones (radiaciones α y β). Sin embargo, los fotones de 59.5 keV del ^{241}Am pueden ser detectados directamente mediante detectores espectrométricos específicos y lo que permite emplearlo como isótopo llave en la determinación de los otros radionucleidos mediante factores de escala, metodología comúnmente empleada en la caracterización de residuos radiactivos [76]. Los criterios derivados de restricción de uso se pueden expresar en función de la $[^{241}\text{Am}]$ empleando la razón isotópica en actividad $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu} = 0.25 \pm 0.02$ para el año 2008 presentada en la Tabla VIII:

$$\text{Restricción total: } [^{239+240}\text{Pu}] = \frac{[^{241}\text{Am}]}{0.25} = 4 [^{241}\text{Am}] \geq 25 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1} \rightarrow [^{241}\text{Am}] \geq 6.25 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$$

$$\text{Restricción parcial: } [^{239+240}\text{Pu}] = \frac{[^{241}\text{Am}]}{0.25} = 4 [^{241}\text{Am}] \geq 5 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1} \rightarrow [^{241}\text{Am}] \geq 1.25 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$$

Resaltar que en esta aproximación no se considera el término fuente completo de actinoides en los suelos contaminados de Palomares que incluyen también el ^{238}Pu , el ^{241}Pu , y los isótopos de U, cuya contribución se puede obviar pues su aportación en actividad ya se ha mencionado que es casi 5 órdenes de magnitud inferior a la del Pu y Am. Para considerar la presencia de varios isótopos en la contaminación, se ha aplicado la metodología para la exención y desclasificación de materiales contenida en las regulaciones UE [66] y de la OIEA [67], que, en el caso de los suelos de Palomares, se resume en la siguiente expresión:

$$\frac{[^{238}\text{Pu}]}{\text{CR}(^{238}\text{Pu})} + \frac{[^{239}\text{Pu}]}{\text{CR}(^{239}\text{Pu})} + \frac{[^{240}\text{Pu}]}{\text{CR}(^{240}\text{Pu})} + \frac{[^{241}\text{Pu}]}{\text{CR}(^{241}\text{Pu})} + \frac{[^{241}\text{Am}]}{\text{CR}(^{241}\text{Am})} \leq 1 \quad <9>$$

donde CR(i) indican los criterios derivados para cada isótopo, que son $5 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ para ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu y ^{241}Am y $200 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ para ^{241}Pu [75].

La Tabla XI presenta las relaciones isotópicas de actividad relativas a ^{241}Am en el momento del accidente y su evolución. También se muestra el valor de concentración de ^{241}Am equivalente, $[^{241}\text{Am}]_{\text{eq}}$, para la suma de todos los radionucleidos correspondiente al criterio de restricción parcial de uso de terrenos establecido por el CSN, que es de $1.00 \pm 0.04 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ en el periodo 2008 - 2066. Este valor es el que debe ser alcanzado por la sensibilidad y límite de detección de las técnicas de medida a aplicar en la caracterización radiológica in situ de los terrenos. De un modo similar se obtiene $[^{241}\text{Am}]_{\text{eq}} = 5 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ como el criterio de restricción total de uso de los terrenos. En consecuencia, los criterios de restricción de uso derivados de los establecidos por el CSN para el $^{239+240}\text{Pu}$ se pueden expresar en función del ^{241}Am como:

- **Restricción total** para las actividades en los terrenos que supongan un nivel de dosis residual igual o superior a $5 \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$. La concentración derivada de ^{241}Am de esta dosis es $5 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$, considerando la presencia conjunta de isótopos de Am y Pu en el periodo 2006 - 2066.
- **Restricción parcial** y realizar estudios adicionales cuando las actividades puedan dar lugar a una dosis residual de $1 \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$. La concentración derivada de ^{241}Am de esta dosis es $1 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$, considerando la presencia conjunta de isótopos de Am y Pu en el periodo 2006 - 2066.

Tabla XI: Estimación de las razones isotópicas de actividad relativa a ^{241}Am en el momento del accidente y su evolución.

Fecha de referencia	$\Delta t / \text{a}$	$^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$	$^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$	$^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$	$^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$	$[^{241}\text{Am}]_{\text{eq}} \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$
17/01/1966	0	0.245	9.09	2.00	65.5	2.79
17/01/1991	25	0.081	3.70	0.81	7.78	1.16
17/01/2008	42	0.063	3.33	0.73	3.33	1.04
17/01/2016	50	0.058	3.23	0.71	2.10	1.01
17/01/2041	75	0.048	3.23	0.71	0.61	1.00
17/01/2066	100	0.040	3.33	0.73	0.197	1.02

1.4.2 Plan de medidas

El plan de medidas incluye los métodos teóricos y experimentales que se proponen para obtener la información sobre el terreno requerido para los objetivos de la caracterización radiológica. En general, los planes de medida se basan en la información existente sobre la que se elabora un primer modelo del alcance de la contaminación. Con esta información y, considerando las propiedades físicas, químicas y radiactivas de los contaminantes, se prepara un diseño experimental para la realización de las medidas que incluye: la selección de los equipos, procedimientos de medida, criterios para la realización de las medidas en campo, toma de muestras, registro y visualización de la información obtenida, revisión continua del modelo inicial de acuerdo con los nuevos datos y, finalmente, la evaluación de los resultados que incluyen conclusiones y propuestas concretas para el plan de acciones de remedio.

La selección de las técnicas de medida a emplear en la caracterización radiológica de Palomares se basó en las siguientes consideraciones:

- Debido a la escasa movilidad vertical de los óxidos de Pu y Am, es esperable que la contaminación remanente en las áreas no alteradas (colinas de la zona 2 y la zona 6) se encuentre en el suelo superficial, entendiéndose como tal los primeros 15 cm desde la superficie.
- En las zonas alteradas por los trabajos de remedio de 1966 y posteriormente por su explotación agrícola (zona 3 completa y los llanos y las terrazas de la zona 2, incluyendo dos trincheras que se pudieron practicar), la contaminación se ha removido y mezclado con suelo limpio en profundidades de hasta varios metros.
- El área de la superficie a caracterizar en primera aproximación es superior a 600 ha y afecta a zonas rurales y urbanas. En las zonas próximas a los puntos de impacto nº 2 y 3, el área a caracterizar con más detalle es de unas 12 ha.
- Los isótopos de Pu son los contaminantes principales cuyas emisiones de radiación ionizante son partículas α (^{238}Pu , ^{239}Pu y ^{240}Pu) y β (^{241}Pu) más rayos X que no superan los 22 keV de energía, todas ellas prácticamente indetectables en campo por ser absorbidas en los propios agregados y la rugosidad del terreno.
- Las radiaciones ionizantes emitidas por el ^{241}Am asimismo son partículas α y rayos X, pero también emite un fotón de 59.5 keV. Esta radiación apenas produce tasa de dosis externa, por lo que es difícil su detección en campo con monitores clásicos basados en la ionización en gases (cámara de ionización, contador proporcional, tubos Geiger-Müller). Sin embargo, dicha radiación si es detectable en campo con equipos de espectrometría γ .
- Transcurridos casi 50 años desde el accidente, la generación de ^{241}Am por la desintegración del ^{241}Pu ha superado más del 90 % de la cantidad máxima. Según acreditan numerosos antecedentes experimentales en el desarrollo del Proyecto Indalo y en el análisis de partículas discretas, en suelos la relación isotópica $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu} \approx 4$, siendo este su valor máximo y que será aproximadamente constante en los próximos decenios.

En consecuencia, se propuso un plan de medidas basado en la detección de los fotones de 59.5 keV emitidos por el ^{241}Am mediante técnicas de espectrometría γ in situ (en adelante EGIS), es decir, sobre el propio terreno, y en laboratorio (muestras de suelo de distinto tipo y tamaño). La espectrometría γ sí permite discriminar el fondo natural y alcanzar los niveles de detección requeridos por los criterios expuestos en el apartado 1.4.1. El plan de medidas propuesto para la caracterización de los terrenos contaminados por Am y, mediante sus factores de escala, Pu en Palomares contiene los siguientes tipos de medidas:

- Medidas dinámicas, que consistieron en recorrer sistemáticamente la superficie que se supone afectada por la contaminación, registrando la posición geográfica y las medidas EGIS con tiempos de adquisición de menos de 5 s.
- Medidas estáticas, que consistieron en efectuar medidas de EGIS del orden de minutos en puntos seleccionados a juicio de experto basado en la información disponible. En esos mismos puntos se efectuaron medidas de la tasa de dosis equivalente ambiental a 1 m con monitores de radiación específicos para este tipo de medidas.
- Muestreo de suelo superficial (hasta 15 cm), obteniendo muestras inalteradas del mismo en las mismas localizaciones de las medidas EGIS estáticas. Estas muestras fueron luego medidas por espectrometría γ en los laboratorios del CIEMAT en Palomares y Madrid.
- Muestreo de testigos de sondeos practicados hasta 5 m de profundidad en puntos seleccionados a juicio de experto basado en la información disponible. Los testigos se inspeccionaban en toda su longitud y se extraían muestras inalteradas con geometría similar a las muestras de suelo superficial y fueron luego medidas por espectrometría γ en los laboratorios del CIEMAT en Palomares y Madrid.
- Estudio de las distribuciones de actividad y masa en función del tamaño de partícula para varias muestras representativas de los terrenos estudiados.

2. Materiales y métodos

2.1 Análisis de espectrometría γ

Los espectros de emisión γ son distribuciones diferenciales del número de pulsos N en función de la energía, dN/dE . En esencia consisten en una lista ordenada del número de pulsos N_1, \dots, N_n registrados en cada uno de los n intervalos de altura de pulsos consecutivos que se denominan canales. El número de orden i del canal se relaciona con la energía depositada en el detector y, por tanto, con la energía de la radiación incidente E_i :

$$E_i = \sum_{j=0}^m C_j i^j \quad <10>$$

En general, con los detectores espectrométricos y las electrónicas actuales esta expresión se reduce a una relación lineal:

$$E_i = C_0 + C_1 i \quad <11>$$

La absorción total de un fotón incidente con una determinada energía en el detector ideal producirá pulsos de igual intensidad que en el espectro aparecerán en el correspondiente canal, denominándose a esta señal pico de absorción total de energía o fotopico. Debido a varias incertidumbres estadísticas relacionadas con el proceso de detección y el posterior tratamiento electrónico de la señal obtenida, el fotopico se ajusta a un modelo gaussiano que se extiende a los canales vecinos [77], F_i (Figura 16):

$$F_i = N_c e^{-\frac{(E_i - E_c)^2}{2\sigma^2}} \quad <12>$$

donde N_c es la altura del fotopico, E_c es la energía correspondiente a su centroide y σ es la anchura característica de la gaussiana (desviación típica), que se relaciona con la anchura del pico a la mitad de su altura, FWHM (del inglés Full Width at Half Maximum):

$$FWHM = 2.355 \sigma \quad <13>$$

Este modelo de los fotopicos permite determinar por métodos diferenciales sencillos (primera y segunda derivadas numéricas) el centroide y los límites en energía (I , D) de la región de interés (RDI) y por tanto el área integrada bajo el fotopico con un nivel de confianza del 68 % (1σ) tal y como se muestra en la Figura 16. Aumentando el orden de las derivadas se pueden alcanzar niveles de confianza del 95 % (2σ) o incluso superiores, si bien eso extenderá la RDI y propiciará el solapamiento con otros fotopicos cercanos. La

verificación del modelo gaussiano de los fotopicos es necesaria para el cálculo de las incertidumbres en el análisis.

La relación entre la FWHM y la altura del fotopico H en el centroide se denomina resolución, R , y es un parámetro fundamental que define las capacidades de medida del sistema de espectrometría:

$$R = \frac{FWHM}{H} \tag{14}$$

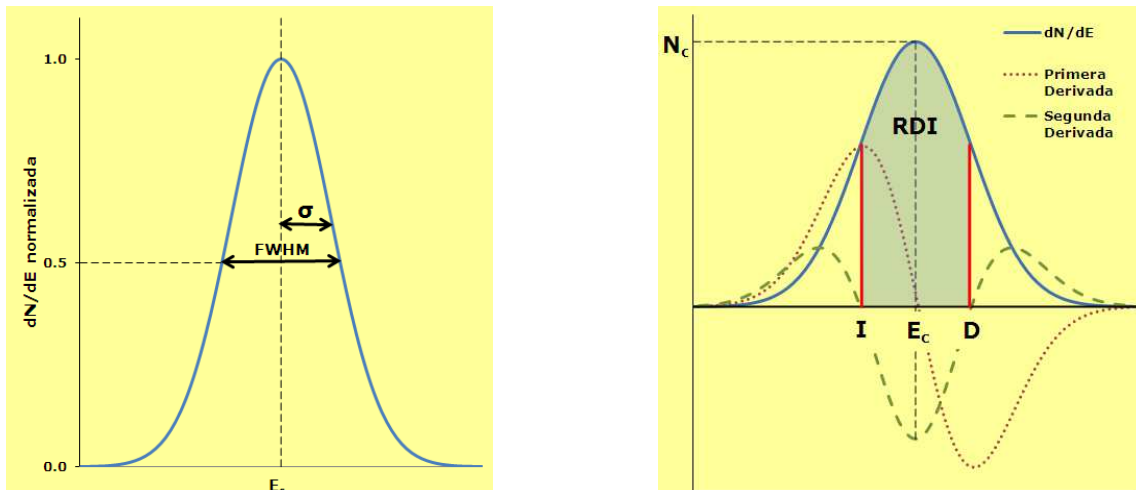


Figura 16: Modelo gaussiano para un fotopico de espectrometría γ (Izquierda) y métodos diferenciales para determinar el centroide y la región de interés, RDI (Derecha)

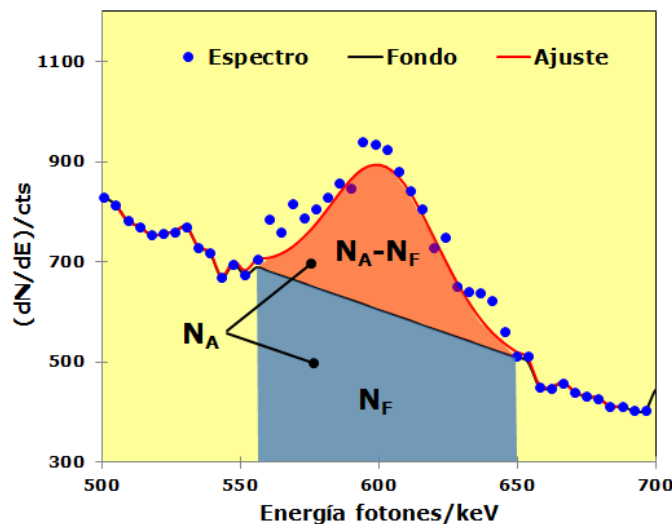


Figura 17: Análisis de fotopicos de espectrometría γ , que incluye la definición de la región de interés, el cálculo del fondo continuo, el ajuste al modelo gaussiano y el cómputo del área neta $N_A - N_F$.

El espectro γ experimental también incluye otros efectos debidos al tamaño finito del detector, a los tres mecanismos principales de interacción de la radiación con la materia (efecto fotoeléctrico, dispersión Compton y producción de pares) y a la presencia de otros radionucleidos [78] [79]. Ello conlleva que el espectro contenga un fondo continuo en todo el rango de energía sobre el que se superponen los fotopicos debidos a las emisiones γ de los radionucleidos presentes, en particular los emisores γ del ^{40}K y de las series naturales de U y Th. Uno de los métodos más comunes para la estimación del fondo continuo consiste en reagrupar el espectro en nuevos intervalos cuya anchura y espaciado son proporcionales a

la FWHM en el centro de cada intervalo [80] que, tras un proceso iterativo, permiten obtener funciones continuas que delimitan la base de los fotopicos.

Ya sobre el espectro neto se inicia la búsqueda de los fotopicos y la verificación de la forma gaussiana (Figura 17). Finalmente se calcula el número de cuentas totales bajo el fotopico N_A y el número de cuentas de fondo N_F que están bajo el fondo continuo en la RDI. El área neta del fotopico $N_A - N_F$ está relacionada con la cantidad de radiación que se detecta en dicha energía y que, en principio, será proporcional a la actividad A de la fuente, para lo que se define la magnitud adimensional eficiencia, ε , que depende de la energía de los fotones y su probabilidad de emisión, p :

$$\varepsilon = \frac{N_A - N_F}{A \cdot p \cdot t} \quad <15>$$

donde t es el tiempo de medida, que en este caso es el mismo para la medida de actividad y del fondo. En algunas aplicaciones conviene expresar la eficiencia total como el producto de la eficiencia del término fuente de la actividad ε_A y de la eficiencia del instrumento ε_I [81] [82] [68]:

$$A = \frac{N_T - N_F}{\varepsilon \cdot t} = \frac{N_T - N_F}{\varepsilon_I \cdot \varepsilon_A \cdot t} \quad <16>$$

La incertidumbre típica combinada de la actividad $u(A)$ [83] se calcula en función de las incertidumbres típicas u de cada variable, según la expresión [84]:

$$\frac{u_c^2([A])}{[A]^2} = \left(\frac{N_T}{N_T - N_F}\right)^2 \frac{u^2(N_T)}{N_T^2} + \left(\frac{N_F}{N_T - N_F}\right)^2 \frac{u^2(N_F)}{N_F^2} + \frac{u^2(\varepsilon_I)}{\varepsilon_I^2} + \frac{u^2(\varepsilon_A)}{\varepsilon_A^2} + \frac{u^2(t)}{t^2} \quad <17>$$

La expresión de la concentración de actividad mínima detectable, CAMD, asumiendo que las probabilidades para los errores tipo I y II son iguales a 0.05 y que los tiempos de medida de la muestra y el fondo son también iguales es [82]:

$$CAMD = \frac{5.41 + 4.65\sqrt{N_F}}{\varepsilon_I \cdot \varepsilon_A \cdot t} \quad <18>$$

2.2 Selección de los equipos de medida

Los equipos PAC-1S que se emplearon en las acciones de remedio desarrolladas en Palomares inmediatamente después del accidente estaban diseñados para detectar las emisiones α de los isótopos ^{239}Pu y ^{240}Pu , para lo cual el detector de centelleo de NaI:TI estaba protegido por una delgada lámina de Al o plástico. Este equipo era muy útil en su aplicación a superficies planas y regulares pero resultó muy problemático en su aplicación en campo en Palomares, ya que la vida media de las láminas fue de solo 2.5 min [85].

Debido a este tipo de experiencias, se comenzó a desarrollar el detector FIDLER, acrónimo de 'Field Instrument for the Detection for Low Energy Radiation' (Instrumento de campo para la detección de radiación de baja energía), que es un detector cilíndrico de centelleo de NaI:TI, de 12.7 cm de diámetro y sólo 0.16 cm de espesor que asegura la mejor relación señal/ruido para fotones de hasta 200 keV [4], donde predomina la absorción fotoeléctrica en más del 95 % de las interacciones. Esta elevada razón superficie-volumen corresponde a una configuración de 'detector pequeño' [78], donde únicamente las interacciones por efecto fotoeléctrico depositan toda su energía en el volumen del detector, ya que el recorrido libre medio de otras interacciones como el efecto Compton y la producción de pares (cuando la energía del fotón es mayor que 1.022 MeV) son mayores que el espesor del detector.

La superficie externa del detector se protege con una delgada ventana de Be o Al y en aplicaciones en el exterior se añadía una tapa de plástico. La superficie interna se conecta mediante una guía óptica de cuarzo con un tubo fotomultiplicador del mismo diámetro que el detector (12.7 cm de diámetro). La señal es analizada con una electrónica monocal portátil operada con baterías, permitiendo seleccionar las ventanas 13 – 20 keV para los rayos X del Pu y 50 – 70 keV para la emisión γ del ^{241}Am . El conjunto pesaba menos de 5 kg y, como se muestra en la Figura 18 (izquierda), permitía efectuar campañas de medidas en campo y desarrollar versiones del FIDLER para uso militar que aún sigue siendo utilizada por las unidades de defensa nuclear. En los años 2000 comenzó a asociarse el FIDLER con analizadores multicanales que permitían registrar y analizar los espectros [86] y con sistemas de posicionamiento global (en adelante GPS), lo que facilitó el desarrollo de campañas sistemáticas de medidas en campo [87].

A partir de 2005 se desarrollaron las electrónicas digitales de pequeño tamaño (UniSpec® [88], DigiBase® [89], Osprey® [90]) y sin apenas dependencia con la temperatura que incluyen la fuente de alta tensión (hasta 1 500 V), todas las etapas del procesamiento digital de la señal obtenida del tubo fotomultiplicador (preamplificador, amplificador de forma, estabilizador de ganancia, conversión analógico-digital, analizador multicanal seleccionable entre 256 y 2 048 canales) y la salida digital de datos a través de puertos USB o Ethernet que permiten su registro automático en ordenadores personales (Figura 18, derecha). Estos componentes están diseñados específicamente para los detectores de centelleo existentes, incluyendo el FIDLER, que forman un conjunto muy compacto operado desde ordenadores personales y apto tanto para las medidas en laboratorio como en aplicaciones medioambientales. Las configuraciones de los FIDLER con electrónicas digitales permiten obtener resoluciones en energía < 20 % para energías en el intervalo de 30 – 60 keV y temperaturas de medida entre 10 y 60 °C.

En la Figura 19 se comparan los espectros γ obtenidos in situ con un detector FIDLER, un detector cilíndrico de NaI:TI de 7.62 cm de diámetro y 7.62 cm de longitud (en adelante NaI:TI 3x3) y un detector cilíndrico de semiconductor de Germanio de alta pureza (en adelante HP-Ge) con una eficiencia del 35 % respecto al NaI:TI 3x3 para los fotones de 1.33 MeV del ^{60}Co . En la Figura 19 izquierda se muestran las respuestas de los detectores cuando son expuestos sin blindaje ni colimación a una distancia de 10 cm a una fuente puntual de ^{241}Am de 0.5 MBq. Los datos del HP-Ge se han ampliado un factor 4 y para apreciar la diferencia entre la resolución de este detector (6 %) frente a los de centelleo, 17.6 % para el FIDLER y 30 % para el NaI:TI. En la Figura 19 derecha se muestran las

medidas in situ del fondo ambiental donde se aprecia el patrón continuo debido a los fotones dispersados que no depositan toda su energía en los detectores.

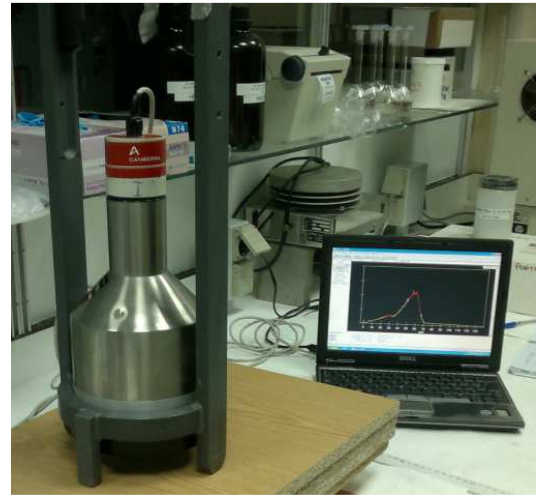


Figura 18: Izquierda: Empleo de un FIDLER monocal en una campaña de medidas puntuales en Palomares (posiblemente en los años 1980). Derecha: FIDLER con una electrónica digital multicanal conectada a un ordenador personal mediante un cable USB por el que se suministra la alta tensión al detector y se recibe la señal digitalizada.

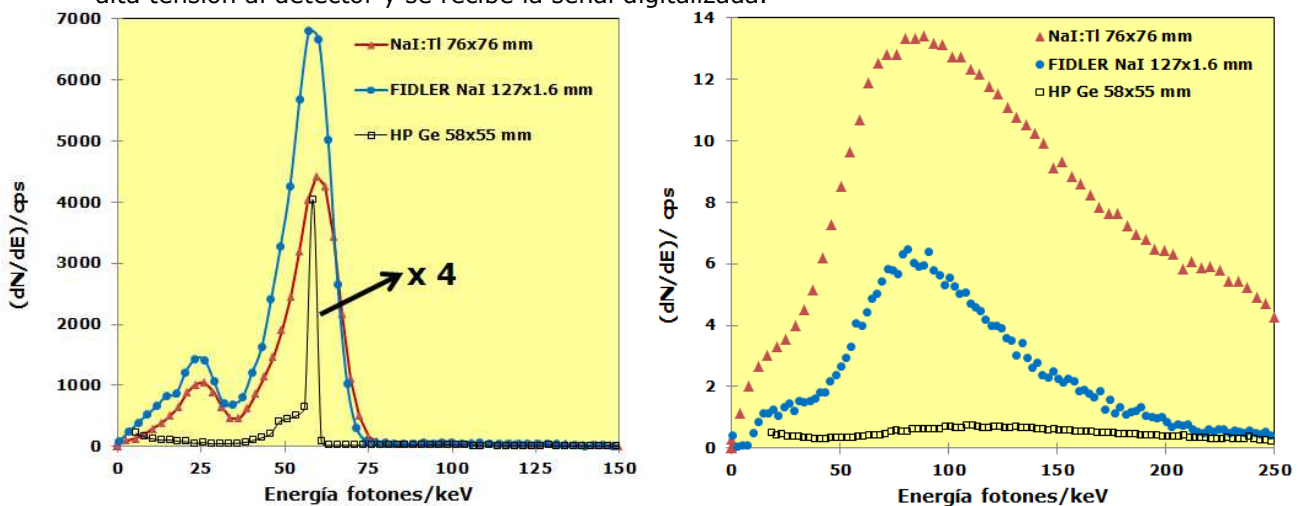


Figura 19: Comparación de los espectros obtenidos in situ con un detector FIDLER de 12.6 cm de diámetro y 0.166 mm de espesor, un detector de NaI:TI de 7.62 cm de diámetro y 7.62 cm de longitud y un detector de Ge de alta pureza de 5.5 cm de diámetro y 5.8 cm de longitud. Izquierda: Fuente puntual de ^{241}Am de 0.5 MBq (los datos del Ge se han ampliado un factor 4). Derecha: Fondo ambiental de las medidas in situ sin colimación ni blindaje.

En la Tabla XII se presenta una estimación cuantitativa de la eficiencia y la actividad mínima detectable de los detectores para varios tiempos de recuento. El FIDLER es el detector más eficiente (40 % más que el NaI:TI 3x3 y 19 veces más que el HP-Ge) y su fondo es inferior al del NaI:TI 3x3 aunque superior al del HP-Ge. De estos datos resulta que el FIDLER ofrece actividades mínimas detectables que son aproximadamente la mitad que las del NaI:TI 3x3 y la cuarta parte que las del HP-Ge.

Tabla XII: Eficiencias y fondos típicos para 60 keV en los detectores NaI:TI, FIDLER y HP-Ge. Las incertidumbres relativas ($k = 2$) son inferiores al 1 %. En las columnas de la derecha se muestran las actividades mínimas detectables para varios tiempos de recuento.

Detector	Eficiencia para 60 keV	Fondo en 60 keV / cps	Actividad mínima detectable / Bq		
			t=2 s	t=300 s	t=3 600 s
NaI:TI 3x3	7.16E-02	1.05E+02	509	39	11
FIDLER	1.04E-01	4.90E+01	248	18	5
HP-Ge	5.39E-03	2.53E+00	1472	83	23

En consecuencia y a partir de los datos presentados, se seleccionó el FIDLER para la realización de todas las medidas dinámicas y estáticas, así como gran parte de las medidas de muestras inalteradas de suelo superficial en Palomares. Así mismo, se utilizó un NaI:TI 3x3 en parte de las medidas dinámicas con objeto de estimar la contribución de otros radionucleidos, en particular los naturales. Por último, se utilizaron detectores de Ge hiperpuro en una campaña preliminar de medidas in situ y en la medida de las muestras de suelo inalteradas dentro de blindajes en Madrid.

2.3 Medidas dinámicas: sistema DINARAD

El objetivo de las medidas dinámicas es determinar la concentración de radioactividad en el suelo superficial de los terrenos afectados con una resolución espacial determinada. En la práctica han consistido en recorrer a pie la superficie de las zonas afectadas realizando medidas radiológicas de corta duración determinando simultáneamente su posición geográfica.

Para la realización de las medidas dinámicas se empleó el sistema DINARAD, acrónimo de sistema de medida dinámica de la radiación [91] [92], que permite obtener simultáneamente las medidas de uno o varios detectores espectrométricos de radiación junto con la posición geográfica con precisión submétrica. El sistema DINARAD se compone de los siguientes elementos:

- Detector FIDLER, específicamente diseñado para la detección de fotones de baja energía (< 80 keV) típicos de transuránidos como Am y Pu.
- Detector NaI:TI 3x3 que permite ampliar el rango de energía de los fotones detectados hasta 2 – 3 MeV lo que posibilita la identificación de otros radionucleidos y la estimación de la tasa de dosis ambiental.
- Electrónicas digitales portátiles UniSpec® [88] que permiten la alimentación y control de los detectores vía USB.
- Soportes regulables en altura desde 5 cm sobre el terreno para los detectores para ser portados por una persona en una mochila o ser instalados en un carro adaptado (Figura 20).
- Sistema de posicionamiento geográfico DGPS (Differential Global Position System) Global Satellite-Based Augmentation System (GSBAS) con precisión submétrica en tiempo real, modelo SF-2050 [93] de NavCom con suscripción

al servicio Starfire® de doble frecuencia. La recepción precisa una antena que se monta en un vástago ligero de Al o fibra de carbono que la sitúa a unos 2 m sobre el suelo. El equipo proporciona los datos en formato NMEA [94] (Datum WGS84 [95]) a través de un puerto serie. La alimentación eléctrica puede ser por red o por baterías que proporcionan unas 3 h de autonomía.

- Ordenador personal portátil con baterías de larga duración (hasta 6 h).
- Programa de espectrometría γ Genie 2000® [96] para la configuración de detectores, adquisición de datos y su análisis.
- Programa DINARAD.EXE [97], desarrollado en Visual Basic para el sistema operativo Windows XP y sus versiones posteriores, que permite visualizar los recorridos y registra automáticamente cada espectro y los datos radiológicos y geográficos.

La mayoría de las medidas se efectuaron a pie como se muestra en la Figura 20 superior, en particular en las colinas de la zona 2 y toda la zona 6 debido a los fuertes desniveles del terreno. Tras desbrozar los terrenos de las zonas 2 y 3, los detectores fueron montados en un carro adaptado que permitía las medidas en calles previamente señalizadas (Figura 20, inferior).



Figura 20: Componentes del sistema DINARAD para ser portado a mano por una persona (Arriba) o instalado en un carro adaptado para la medida en grandes superficies llanas (Abajo).

El procedimiento de medida con el sistema DINARAD requiere la realización de las siguientes etapas:

1. Se comprueba el estado de las baterías del ordenador y del DGPS.
2. Conectar los detectores y el DGPS al ordenador y comprobar su arranque.
3. Si es correcto, se ejecutará en el ordenador el programa DINARAD.EXE.
4. Seleccionar el mapa o imagen calibrados cartográficamente para visualizar los recorridos
5. Se comienzan las medidas con un tiempo de recuento de 2 s.

Una señal sonora informa al operador del correcto funcionamiento del sistema. Tras cada medida, los espectros y los resultados radiológicos georreferenciados que se muestran en la Tabla XIII se almacenan en directorios y bases de datos previamente definidos en el ordenador.

Tabla XIII: Descripción de los datos durante la medida con el sistema DINARAD [91].

Nº Campo	Contenido	Formato	Observaciones
1	Easting UTM, m	xxxxxx.xxx	Distancia al meridiano que define el huso
2	Northing UTM, m	xxxxxx.xxx	Distancia al Ecuador
3	Altitud, m	xx.x	Sobre el nivel del mar
4	Fecha	dd/mm/aa	
5	Hora	hh:mm:ss	En tiempo universal coordinado (UTC)
6	Calidad GPS	AAAA	INV, GPS ó DGPS
7	Número de satélites	xx	0-15
8	HDOP	x.x	Precisión horizontal
9	Latitud NMEA	GGMM.MMMM	
10	Hemisferio	A	N ó S
12	Longitud NMEA	GGMM.MMM	
13	Hemisferio	A	W ó E
14	Terreno	'x AAAAAAAAA'	Lista de valores
15 a 20	cps en ventanas 1-6 del Detector 1	xxx.x	El campo 20 puede indicar tasa de dosis en $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$
21 a 26	cps en ventanas 1-6 del Detector 2	xxx.x	El campo 26 puede indicar tasa de dosis en $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$
27 a 32	cps en ventanas 1-6 del Detector 3	xxx.x	El campo 32 puede indicar tasa de dosis en $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$
33 a 38	cps en ventanas 1-6 del Detector 4	xxx.x	El campo 38 puede indicar tasa de dosis en $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$
39	^{241}Am], $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	xxx.x	
40	Incertidumbre de ^{241}Am], $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	xxx.x	k=2, Nivel de confianza: 95 %
41	^{241}Am] mínima detectable (CAMD), $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	xxx.x	

Los ficheros con los datos de las medidas realizadas se verificaron para detectar posibles incidencias, en particular en los datos geográficos. Las incidencias más frecuentes durante las medidas fueron:

- Número de satélites insuficientes (< 4) que causa una calidad inválida de GPS, la falta de datos de coordenadas geográficas o valores disparatados de las mismas.
- Valores nulos o muy bajos de las variables radiológicas, generalmente debidos a la desconexión accidental del puerto USB de algún detector que obligaba a reiniciar el sistema para restablecer la alta tensión.

2.4 Medidas estáticas y recogida de muestras de suelo superficial y en profundidad

El objetivo de las medidas estáticas es corroborar con mayor exactitud las estimaciones de la [^{241}Am] en el suelo superficial, recoger muestras de tierras tanto superficial como en profundidad (sondeos) y realizar medidas de la tasa de dosis equivalente ambiental. Los puntos de medida y muestreo fueron seleccionados a juicio de experto teniendo en cuenta las medidas dinámicas realizadas previamente.

2.4.1 Sistema ESTARAD

Para las medidas estáticas espectrométricas se utilizó el sistema ESTARAD [98] que cuenta con los mismos componentes del sistema DINARAD (ver Figura 20 superior izquierda) más otros equipos y accesorios para la medida de la tasa de dosis y la recogida de muestras de suelo superficial. El programa ESTARAD permite visualizar mapas o imágenes georreferenciadas donde previamente se habían marcado los puntos a medir y muestrear a juicio de experto en base a los resultados de las medidas dinámicas. En cada punto se efectuaron las siguientes tareas:

- Determinación de la posición geográfica con el sistema GSBAS descrito en el párrafo 2.3.
- Adquisición de un espectro γ in-situ a una altura de 5 cm sobre el terreno con un detector FIDLER durante 300 s, lo que permite reducir la CAMD de ^{241}Am en un factor 10 respecto a las medidas dinámicas ($\approx 0.01 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$).
- Medida durante 60 s de la tasa de dosis equivalente ambiental $H^*(10)$ en contacto y a 1 m de altura sobre el terreno. Se empleó un monitor de tasa de dosis Atomtex 1123 (detector de plástico de centelleo equivalente a tejido), cuya respuesta con la energía para fotones de 60 keV es igual a 1 [99].
- Toma de muestras inalteradas de suelo superficial correspondientes a las profundidades 0 - 5, 5 - 10 y 10 - 15 cm [100].

Las muestras de suelo inalteradas de suelo superficial se tomaron en anillos de acero inoxidable tipo 304 (Cr: 17 - 19 %, Ni: 8 - 11 %, Mn: < 2 %) con las caras interior y exterior pulidas y con número troquelado para su identificación. Cada anillo se fabrica mediante rectificado a torno de alta precisión con estricta tolerancia con respecto a las dimensiones (53 mm de diámetro y 50 mm de altura), de manera que todos ellos tienen la

misma capacidad (100 cm^3) con una desviación máxima de 0.5 % y un peso en vacío de $110 \pm 5 \text{ g}$. La parte inferior del anillo consiste en un bisel en ángulo de 15° que facilita su penetración en los terrenos. Las muestras de tierra se tomaron por percusión sobre el terreno de modo que la muestra no se altera ni se compacta por presión. Una vez tomada la muestra, los extremos de cada anillo pueden cerrarse con tapas de polietileno de 53 mm de diámetro y 1 mm de espesor, de modo que la muestra queda prácticamente hermética y el recipiente es apto para el transporte. Las tapas se rotularon como 'S' e 'I' según correspondiera a la base superior o inferior respectivamente. Los anillos son reutilizables salvo que presente cualquier melladura o deformación en su aro de corte que implica su rechazo para futuras tomas de muestras.

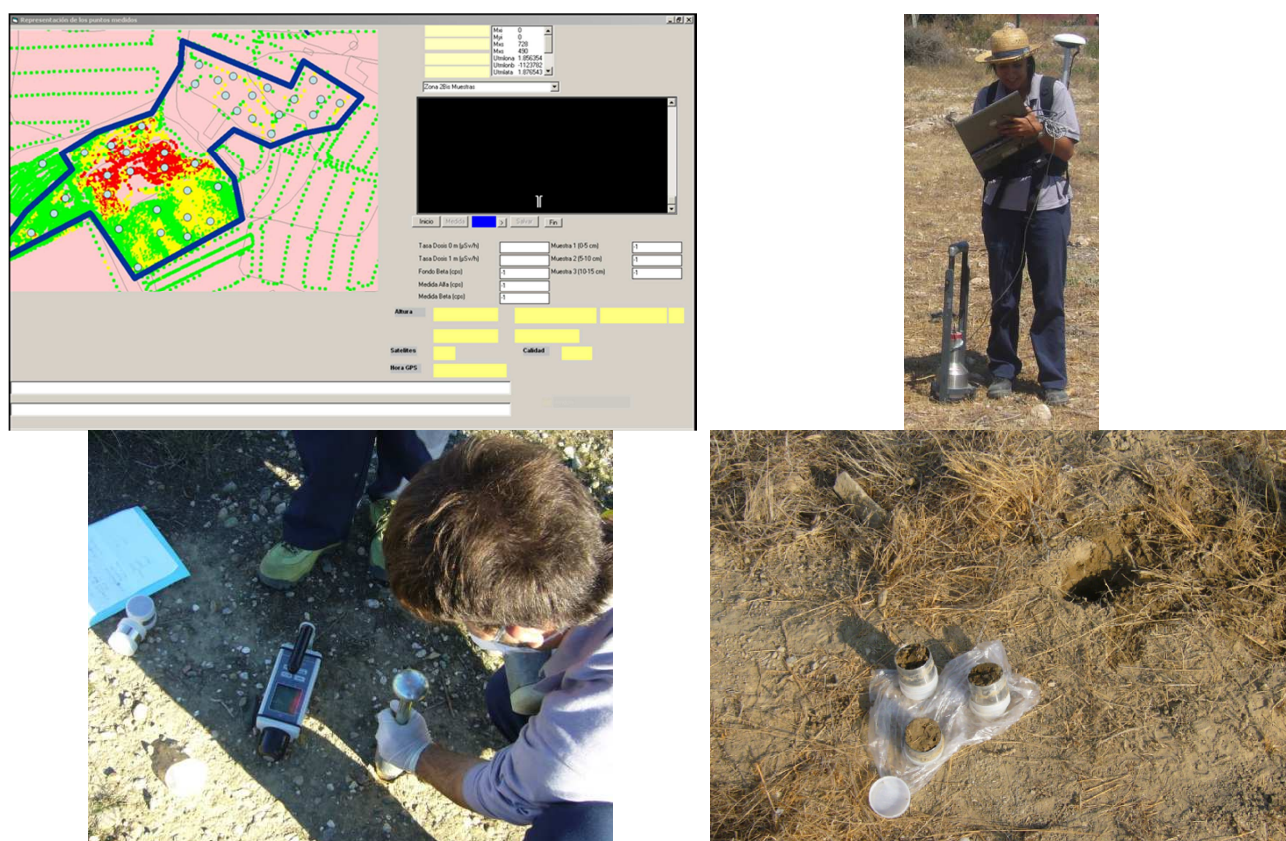


Figura 21: Realización de las medidas estáticas. Superior izquierda: Localización de los puntos de medida y muestreo con el programa ESTARAD. Superior derecha: Espectrometría γ in situ con el FIDLER. Inferior izquierda: Medida de la tasa de dosis y obtención de las muestras inalteradas de suelo. Inferior derecha: Muestras inalteradas de suelo superficial hasta 15 cm de profundidad.

El programa ESTARAD permite el almacén automático de los resultados emparejados de la medida espectrométrica y de la posición geográfica; permitiendo la entrada manual de las tasas de dosis y de la identificación de los anillos empleados en la toma de muestras. Esta caracterización estática en cada uno de los puntos de análisis está compuesta de los siguientes registros:

- Fecha y hora UTC.
- Coordenadas UTM en datum WGS 84 y altitud.
- Tasas de dosis en contacto y a 1 m de altura, en $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$.
- $[\text{}^{241}\text{Am}]$, en $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.
- Incertidumbre de $[\text{}^{241}\text{Am}]$, en $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.

- [^{241}Am] mínima detectable (CAMD), en $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.
- Identificación de las muestras inalteradas de suelo.

2.4.2 Sistema de espectrometría γ in situ de alta resolución

Con objeto de complementar las medidas espectrométricas efectuadas con el FIDLER, también se ha utilizado un Sistema portátil de Espectrometría γ in situ de alta resolución (en adelante SEGIS) basado en un detector cilíndrico de semiconductor de HP-Ge de 5.8 cm de diámetro y 5.5 cm de longitud, con una eficiencia del 35 % respecto al NaI:TI 3x3 para los fotones de 1.33 MeV del ^{60}Co . La cara frontal del detector es una ventana de 0.6 mm de espesor de fibra de carbono que extiende el rango de detección a los fotones de energías inferiores a 100 keV con resoluciones inferiores al 1 %. El detector va montado en un criostato capaz de contener hasta 7 dm³ de $\text{N}_2(\text{l})$ necesario para conseguir la temperatura de operación ($\approx -190\text{ }^\circ\text{C}$) durante 5 – 6 d. La electrónica digital asociada es el Inspector 2000 DSP [101], que puede operar con baterías hasta 10 h y suministra la alta tensión al detector, adquiere y digitaliza la señal detectada y analiza los pulsos conformando los espectros hasta en 16 000 canales mediante el programa de espectrometría γ Genie 2000® [96]. Para las medidas in situ, el detector se coloca sobre un trípode, con el detector dirigido hacia el suelo y a una altura de $1.00 \pm 0.05\text{ m}$ (Figura 22). También se dispone de un carro especial que permite orientar el detector en cualquier dirección, usar colimadores de Pb de hasta 5 cm de espesor que permiten delimitar el ángulo de detección entre 0 y 180° e incluso cerrar el blindaje y configurar SEGIS como un detector de laboratorio como se describe en la sección 2.5.

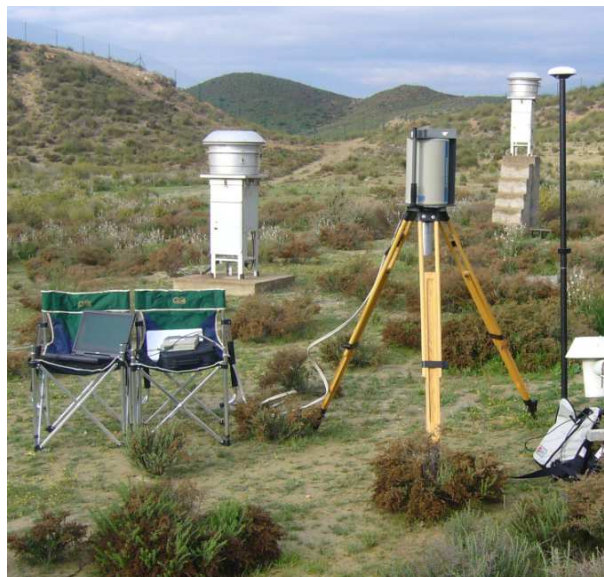


Figura 22: Sistema de espectrometría γ in situ (SEGIS) en una medida sobre los terrenos de Palomares.

2.4.3 Sondeos

Con objeto de estimar la profundidad de la contaminación se diseñó una campaña de sondeos en las Zonas 2, 3 y 6 [58]. El número de sondeos y su ubicación se determinó con un diseño de muestreo a juicio de experto, por el cual se aumenta la densidad de muestras en las zonas donde se dispone de información o se tiene un interés particular, pero la ubicación de los puntos en dichas áreas es aleatoria.

La mayoría de los sondeos se practicó hasta 2.4 m de profundidad mediante el ensayo de penetración tipo que permitió obtener un testigo de terreno inalterado en tubos cilíndricos de PVC de 50 mm de diámetro y 60 cm de longitud (Figura 23). En algunos casos se superaron los 4.5 m de profundidad. En litologías duras o con presencia de gravas los sondeos se practicaron por rotación con corona hueca. Por último, en las zonas donde fue

imposible el acceso con maquinaria, los sondeos se practicaron hasta 60 cm con barrenos rectos o helicoidales.

En cada uno de los testigos de los sondeos se realizó un control radiológico con un equipo Mini-FIDLER Modelo MS-6020 de la firma LAMSE específicamente diseñado para la detección de fotones de baja energía (< 80 keV), obteniéndose así un perfil radiológico de cada testigo [102] [103]. Seguidamente se señalaron los puntos de interés y, mediante el corte de los testigos de PVC, se obtuvieron muestras inalteradas de 54 mm de diámetro y 50 mm de longitud, geometría similar a los anillos empleados en la toma de muestras de suelo superficial. Las tapas se rotularon con 'S' e 'I' según correspondiera a la base superior o inferior de los recipientes.



Figura 23: Campaña de sondeos para determinar la profundidad de la contaminación: Realización del sondeo por rotación (Izquierda); Examen radiométrico del testigo obtenido (centro); Muestras representativas obtenidas mediante corte del testigo (derecha).

2.5 Medida de la actividad en muestras de tierras

La [^{241}Am] en las muestras inalteradas de suelo superficial y sondeos fue determinada mediante espectrometría γ con FIDLER y detectores de HP-Ge. En las medidas de las fracciones granulométricas obtenidas según se describe en el apartado 1.3.2 se emplearon sólo detectores de HP-Ge.

Para las medidas con FIDLER, se diseñó un equipo automático que permite la medida simultánea de ambas bases de los recipientes (superior, S, e inferior, I) situando dos FIDLER en frente de cada una de ellas [104] [105]. El equipo dispone de un cambiador de muestras que es un disco horizontal de 50 cm de diámetro en cuya periferia se han tallado ocho alojamientos separados uniformemente sobre la circunferencia exterior del disco. Estos alojamientos son adecuados para el tamaño y geometría de las muestras inalteradas de tierras, tanto superficiales como sondeos. El disco puede girar sobre su eje con ayuda de un motor paso a paso y dispone de varios finales de carrera que permiten controlar digitalmente con el ordenador los movimientos del disco, de modo que se puede situar cada muestra en la posición de medida con gran exactitud. Como se aprecia en la Figura 24, los detectores FIDLER se montan sobre unos soportes regulables en altura de modo que su superficie activa quede en el plano horizontal, uno de ellos (Inferior) por debajo del disco y el otro por encima (Superior). El ajuste en altura de los detectores se efectúa con ayuda de una muestra colocada en la posición de medida de modo que la distancia entre el extremo superior o inferior de la muestra al detector correspondiente sea de 1.5 ± 0.5 cm en ambos casos. El cambiador se controla automáticamente mediante un programa que permite

especificar las muestras a analizar, maneja el movimiento del disco hasta colocar cada muestra en la posición de medida, inicia la adquisición de los espectros simultáneamente en ambos detectores, los analiza bajo el entorno Genie 2000 y guarda los resultados de los espectros en una base de datos.

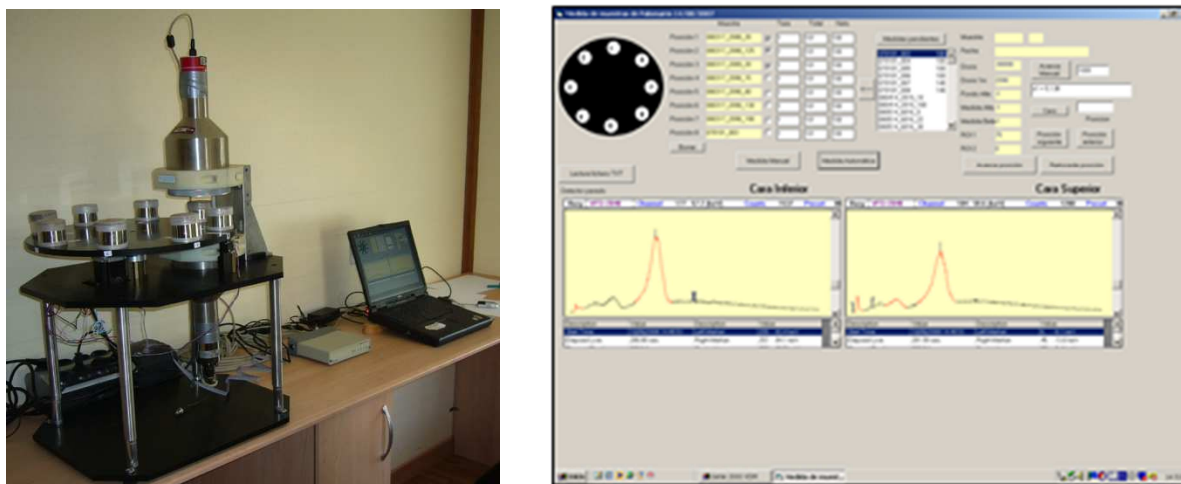


Figura 24: Equipo y programa informático para la medida automática de hasta 8 muestras de tierras inalteradas de suelo superficial y sondeos con dos detectores FIDLER.

Algunas muestras inalteradas de tierras también fueron medidas en la instalación radiactiva del CIEMAT 'IR-15: Laboratorios de Residuos de baja y medida actividad' mediante detectores de HP-Ge de alcance extendido a bajas energías (ventana de policarbonato) contenidos en blindajes de bajo fondo (Figura 25). Estos detectores permiten su calibración matemática mediante los programas ISOCS (In-Situ Object Counting System [7]) y LABSOCS (Laboratory Sourceless Object Counting System [6]), siendo uno de ellos el SEGIS descrito en el apartado 2.4.2. El segundo HP-Ge tenía una eficiencia del 20 % relativa a un detector NaI:TI 3x3 y se operó con una electrónica multicanal digital DSA-1000 de Canberra Industries. La distancia de la muestra al detector fue de 1.0 ± 0.2 mm.



Figura 25: Detectores de HP-Ge blindados empleados para la medida de muestras inalteradas de tierras.

Tras su medida con los HP-Ge, algunas muestras inalteradas procedentes del mismo punto (1-5 cm, 5-10 cm y 10-15 cm) fueron divididas en varias submuestras para determinar la distribución de actividad en el suelo superficial con una resolución espacial aproximada de 5 mm. El material obtenido en cada división fue depositado cuidadosamente en cápsulas Petri de 47 mm de diámetro y 6 mm de altura previamente taradas y

precintadas para evitar su apertura y la dispersión accidental de su contenido. Esta geometría también fue empleada en la obtención de las fracciones granulométricas como se describe en el apartado 2.6.

La Figura 26 muestra el esquema del proceso de medida y evaluación de la actividad en las muestras inalteradas y de las muestras obtenidas de ellas para determinar la distribución detallada en profundidad y las fracciones granulométricas. En primer lugar se pesaron los recipientes que fueron previamente tarados y cuyo volumen era conocido, de modo que se pudo determinar la densidad aparente de las muestras. A continuación se procedió al recuento en los espectrómetros γ de cada uno de los extremos S e I de los recipientes, simultáneamente con el cambiador FIDLER o secuencialmente en los detectores HP-Ge. Tras determinar las áreas del fotopico en torno a 59.5 keV, se calculó el cociente $\max(S/I, I/S)$ que, junto con la densidad aparente, determinó el valor de la eficiencia a emplear, resultando finalmente la actividad de ^{241}Am y su incertidumbre.

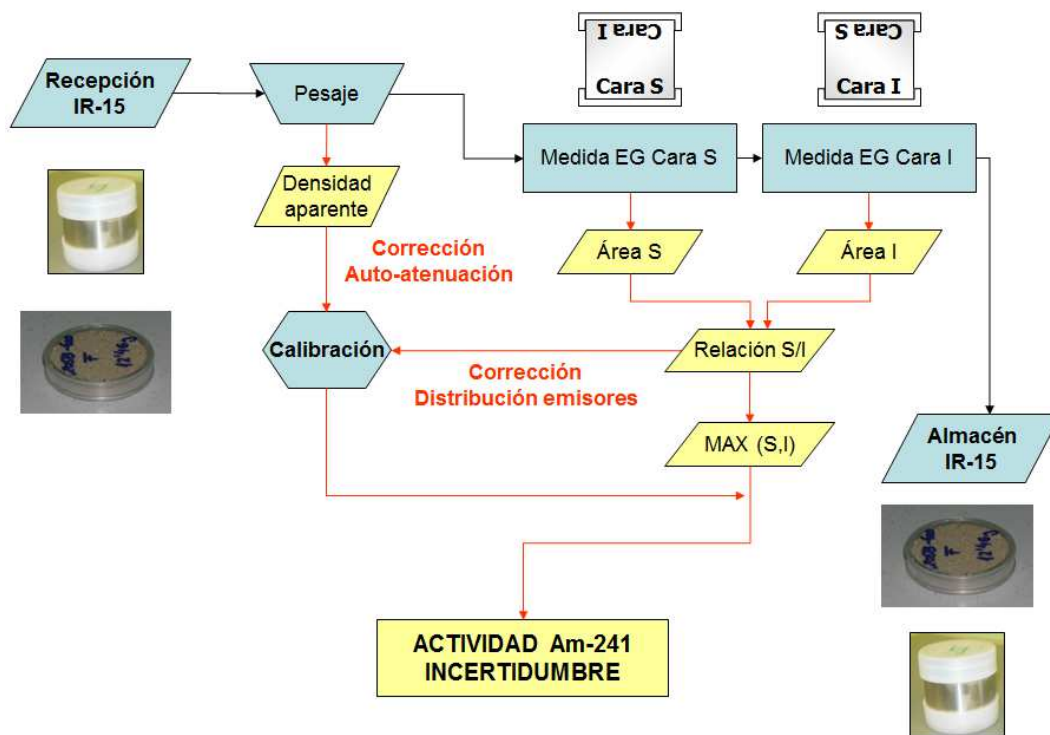


Figura 26: Proceso para la medida de la actividad de ^{241}Am en muestras inalteradas y fracciones granulométrica de tierras de Palomares.

2.6 Distribuciones en función del tamaño de partícula

Una vez obtenidas y caracterizadas las muestras inalteradas de suelo superficial y sondeos, se estudiaron las distribuciones de masa y actividad de ^{241}Am en función de la distribución de tamaño de partícula en los suelos de Palomares [106]. Esta información es de gran importancia tanto para la comprensión de la pluma de contaminación, como para la selección de técnicas industriales de segregación que permitan gestionar adecuadamente aquellas tierras que requieran una atención particular desde el punto de vista de la Protección Radiológica y la minimización de residuos radiactivos. Todas las operaciones que

se describen a continuación tuvieron que ser realizadas en vitrinas de la instalación 'IR-15: Laboratorios de Residuos de baja y medida actividad'.

En la selección de las muestras se consideró la modificación del uso de las parcelas de origen desde 1966 (desde inalterada a fuertemente alterada por usos agrícolas o urbanísticos), así como los resultados de las caracterizaciones superficiales y las propias medidas no destructivas de los recipientes, que proporcionaron información sobre el peso en húmedo, densidad aparente y actividad total.

Las muestras inalteradas presentaban porciones de material aglomerado por presión y retenían aún la humedad natural que tenían en el momento de ser recogidas. Por ello, fue necesario someterlas a un proceso de secado por evaporación y disgregación de los aglomerados mediante técnicas sencillas. Cada uno de estos recipientes fue abierto y su contenido fue distribuido uniformemente sobre una placa de vidrio de 14 cm de diámetro colocada durante 24 h bajo un epirradiador (Figura 27). Una vez seca la muestra, se pasaron los agregados a un mortero donde se disgregaron manualmente, depositando el material conseguido en un recipiente de plástico autoprecintable de 60 mm de diámetro y 250 ml de capacidad que había sido previamente pesado y al que se añadió el resto de la muestra seca procurando que no quedaran restos en la placa de vidrio. Este recipiente fue pesado con objeto de determinar el peso seco de la muestra y seguidamente se midió por espectrometría γ para obtener una estimación de la actividad total en la muestra seca.



Figura 27: Secado por evaporación y disgregación manual de las muestras.

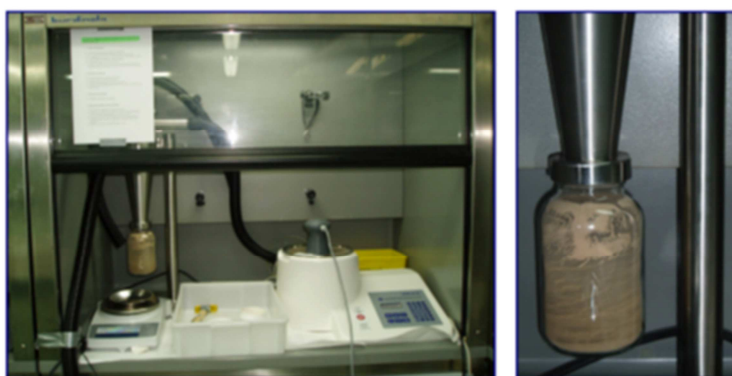


Figura 28: Tamizado en seco de las muestras de suelo por inyección de aire, con detalle del ciclón en el recipiente de recogida de la fracción 'fina'.

Para el fraccionamiento de las muestras se ha utilizado un equipo de tamizado por chorro de aire ALPINE 200 LS-N [107] que permite la determinación de la granulometría de muestras de diversa naturaleza utilizando una corriente de aire (ciclón) para arrastrar las partículas a través del tamiz elegido (Figura 28).

Mediante la utilización secuencial de tamices con diferente luz de malla, se consigue dividir las muestras de suelo en fracciones granulométricas que se caracterizan por tener cada una de ellas un tamaño de grano diferente. En este estudio se emplearon tamices con las siguientes luces de malla: 2 mm, 1 mm, 500 μm , 250 μm , 125 μm , 63 μm y 40 μm , lo que permitió obtener las ocho fracciones granulométricas, que se definirán de la manera siguiente: > 2 mm, 1-2 mm, 0.5-2 mm, 250-500 μm , 125-250 μm , 63-125 μm , 40-63 μm y < 40 μm . El estudio se completó con el microtamizado de varias fracciones inferiores a

40 µm mediante luces de malla de 10 y 20 µm, obteniendo así las fracciones granulométricas 20-40 µm, 10-20 µm y < 10 µm.

El material obtenido en cada separación granulométrica fue depositado cuidadosamente en cápsulas Petri de 47 mm de diámetro y 6 mm de espesor previamente taradas y precintadas para evitar su apertura y la dispersión accidental de su contenido (Figura 29). En el fraccionamiento se originaron desde 8 hasta 19 cápsulas Petri por muestra, siendo todas ellas medidas posteriormente por espectrometría γ con detectores HP-Ge.

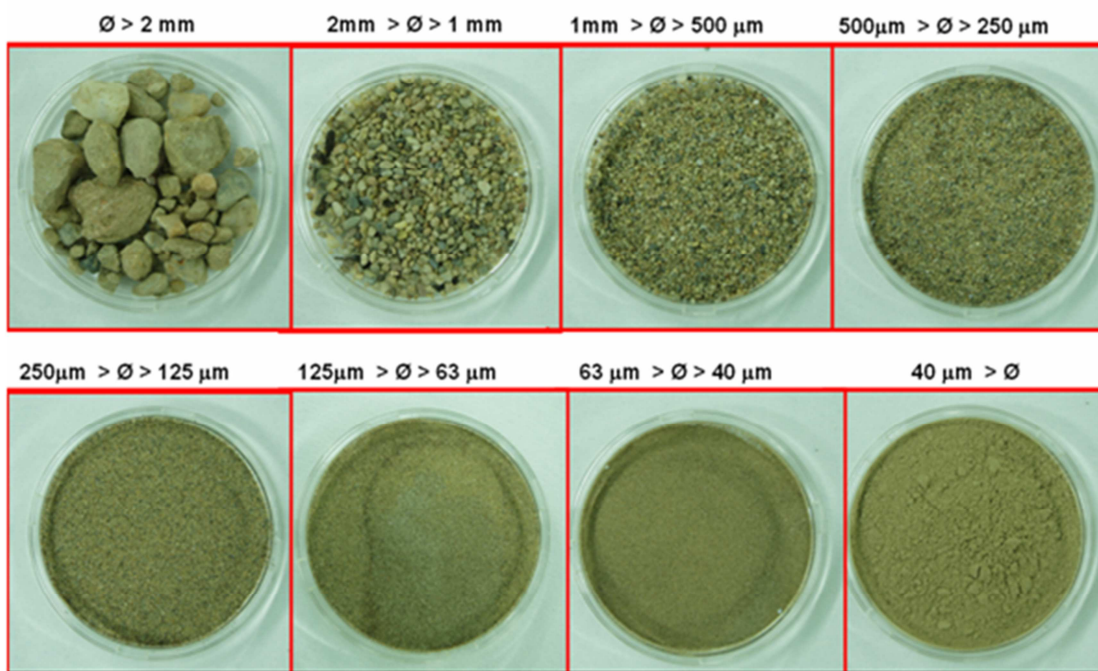


Figura 29: Fracciones granulométricas obtenidas del tamizado en seco de una muestra y depositadas en cápsulas Petri.

El volumen ocupado por la muestra en cada cápsula se estimó mediante la medida del nivel de llenado y el cálculo de la superficie del segmento circular correspondiente (Figura 30). Seguidamente se determinaron el peso neto y la densidad aparente en cada cápsula.

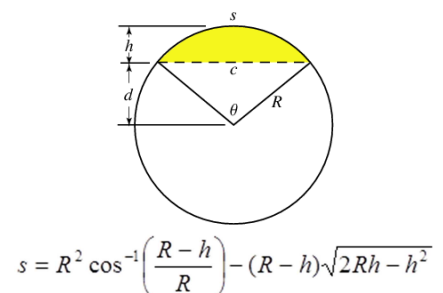
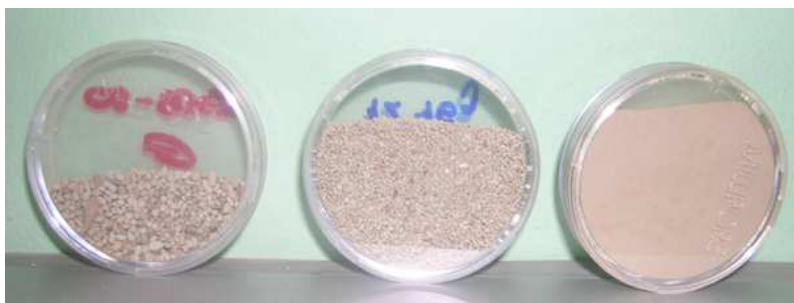


Figura 30: Niveles experimentales de llenado de las cápsulas Petri con las distintas fracciones granulométricas y método de cálculo del volumen contenido.

2.7 Segregación de tierras contaminadas en muestras a media escala

Como paso intermedio entre la caracterización radiológica de los terrenos contaminados y la propuesta de acciones de remedio, se realizó un estudio granulométrico con muestras del orden de kg con objeto de validar las conclusiones del estudio a nivel de laboratorio e identificar problemas prácticos que ayuden en la selección de tecnologías de actuación. Para ello, la edificación construida en la zona 3 y varias naves anexas se reconvirtieron durante el PIEM-VR en una planta piloto para el tratamiento de tierras (en adelante PPTT) cuyo objetivo principal es desarrollar estudios sobre caracterización y tratamiento de las tierras contaminadas en Palomares con muestras de mayor tamaño (del orden de kg). La PPTT cuenta con las siguientes instalaciones:

- Sala de medidas con esclusa a la sala de manipulación.
- Sala de manipulación con dos recintos aislados tipo SAS.
- Sala de reuniones.
- Vestuario y aseo.
- Sala de control de la ventilación.
- Almacén.

Tanto la sala de medidas como la de manipulación cuentan con ventilación con caudal de impulsión entre 1 500 y 2 100 m³·h⁻¹ que permite entre 5 y 10 renovaciones completas del aire cada hora en dichas estancias. Para evitar la contaminación externa e interna de las personas, durante la manipulación y medida de las muestras es necesario adoptar precauciones como emplear ropa de trabajo y protecciones tipo Tyvek, guantes, mascarillas o máscaras de cara completa. Además existen medios de control (monitores de contaminación superficial y pórtico) que permiten verificar a la salida de dichas salas que la persona no presenta contaminación radiactiva.

El estudio consistió en la selección de varios puntos de las zonas 2, 3 y 6 basada en los datos de caracterización radiológica y granulometría más característicos. En cada punto se señaló una superficie aproximada de 50 x 50 cm², en cuyo interior se efectuó una medida estática con el sistema ESTARAD (Figura 31). Seguidamente, se retiró la tierra paulatinamente desde la superficie hasta alcanzar una profundidad de 10 – 15 cm. La tierra extraída se depositaba en recipientes de plástico previamente tarados de 12 dm³ de capacidad. Al finalizar la recogida de muestra se efectuó otra medida con ESTARAD en el hoyo excavado, que quedaba debidamente señalado hasta su relleno posterior. En cada punto se recogieron 10 de estos recipientes lo que supone entre 100 – 150 kg de muestra del suelo que, tras comprobar que no presentaban contaminación externa, se transportaban a la PPTT.

Tras comprobar nuevamente en la PPTT que los recipientes no presentaban contaminación externa, se procedió a medirlos uno por uno con los siguientes detectores HP-Ge que son enfriados electromecánicamente y no precisan N₂(l) :

- Modelo Falcon 5000® [108] operado en el entorno Genie 2000 [96], ambos de la marca Canberra. El detector de este equipo, de 60 mm de diámetro y 30 mm de longitud, con una eficiencia relativa del 18 % respecto al NaI:TI 3x3 para fotones de 1.3 MeV.
- Modelo Detective EX-100 [109] operado con el programa MAESTRO® [110], ambos de la marca Ortec (Figura 32). El detector de este equipo, de 50 mm de diámetro y 30 mm de longitud, con una eficiencia relativa del 12 % respecto al NaI:TI 3x3 para fotones de 1.3 MeV.



Figura 31: Obtención de las muestras (100-150 kg) para el estudio de segregación de tierras a escala media.



Figura 32. Izquierda: Equipo FALCON 5000®. Derecha: Medida de actividad en los recipientes de 12 dm³ con el HP-Ge Detective de Ortec.

A continuación, cada recipiente fue pesado en una báscula con resolución de 0.1 g y fue analizado con el equipo Tolva-Revólver, un prototipo para la medida y segregación de tierras contaminadas por ²⁴¹Am [8] basado en la medida simultánea de un recipiente cilíndrico de metacrilato de 1.5 mm de espesor, 20 cm de diámetro y 30 cm de altura (9.2 dm³ de capacidad) con cuatro detectores FIDLER enfrentados dos a dos entre sí y a dos alturas (Figura 33). Como en los sistemas DINARAD y ESTARAD, cada detector está

conectado a una electrónica portátil que permite la configuración y control, en este caso el módulo Osprey® [90]. Los detectores FIDLER están fijados sobre un radio de una estructura metálica circular, dejando un hueco para la posición de medida a la que llega la muestra tras su carga mediante un mecanismo controlado por un autómatas industrial programable. La distancia entre el cilindro y los detectores se puede ajustar entre 1 - 5 cm. Cada detector es sensible aproximadamente al 25 % del volumen contenido en el recipiente, de modo que el dispositivo permite examinar la distribución de la [^{241}Am] en el recipiente.

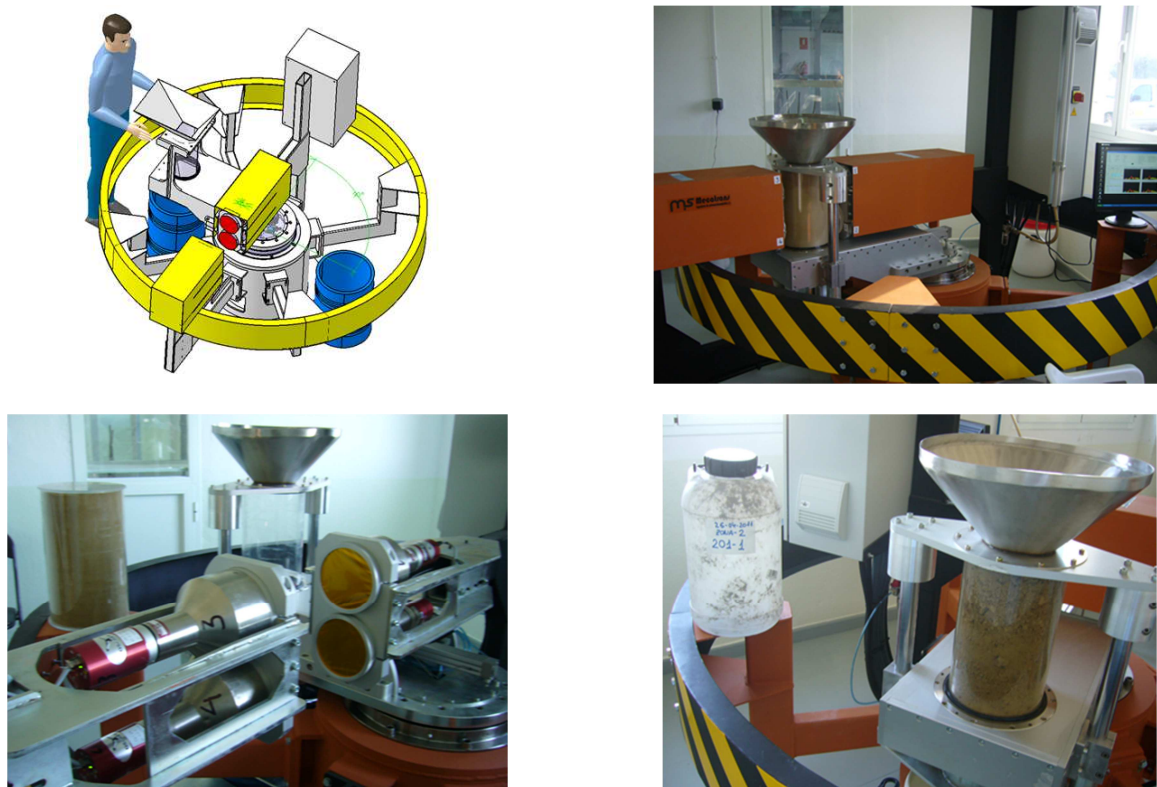


Figura 33: Prototipo registrado para patente [8] del dispositivo para la medida y segregación de tierras contaminadas por ^{241}Am . Superior: Esquema y realización de la Tolva-Revólver. Inferior: Detalle de la disposición de los FIDLER y carga de una muestra de tierra en la geometría de medida.

Todo el sistema está controlado por un programa informático desarrollado en Visual Basic para el sistema operativo Windows XP y sus versiones posteriores (Figura 34), que permite la configuración del sistema, verifica el correcto funcionamiento electromecánico, registra automáticamente los espectros de cada detector, evalúa los resultados y, en función de los mismos, dirige la muestra a la posición de descarga que corresponda: contaminado ($[\text{}^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$) o no contaminado ($[\text{}^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$). Para la evaluación de la actividad en todo el recipiente de medida, el programa calcula el espectro suma de los cuatro espectros experimentales. El prototipo está concebido para procesar al menos el volumen completo de 9.2 dm^3 , aunque si es necesario se pueden ajustar las calibraciones a cualquier cantidad inferior a dicho volumen.

Tras esta medida inicial y ya en un recinto SAS, el contenido de cada recipiente se extendió cuidadosamente sobre varias bateas de $\approx 40 \times 100 \text{ cm}^2$ procurando no superar los

2 cm de espesor para proceder a su secado durante 2 - 3 h con ayuda de 4 lámparas infrarrojas de 1 200 W (Figura 35). Seguidamente, se volvió a depositar el contenido ya seco en un recipiente de 12 dm³ de capacidad para ser nuevamente medido en la Tolva-Revólver.

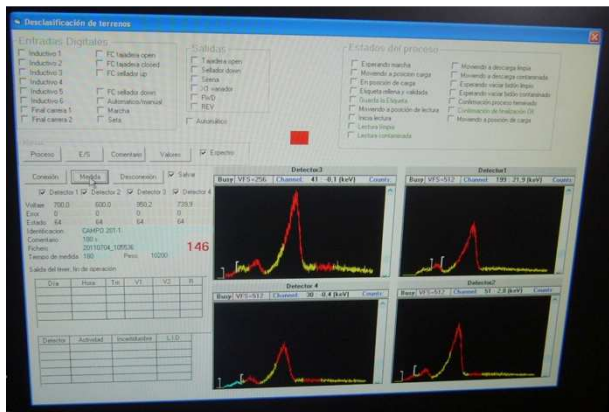


Figura 34: Programa de control y medida de la Tolva-revólver.



Figura 35: Secado de muestras en un recinto SAS.

La fase siguiente fue el tamizado en seco de las muestras con ayuda de 2 tamizadoras industriales modelo FTL-0400 de la firma Filtra Vibración S.L. (Figura 36). Estas máquinas se basan en un motovibrador de masas excéntricas que mueve el producto en las tres dimensiones en amplitudes de 2 - 5 mm sobre tamices de 400 mm de diámetro y luz de malla certificada según la norma ISO 3310-1:2000 [111]. En este estudio se seleccionaron los de luz de malla de 40 µm, 63 µm, 125 µm, 250 µm y 2 mm. Las tamizadoras permiten montar en serie hasta 4 tamices que proporcionan como fracción gruesa de cada tamaño el material que no ha sido tamizado y como fracción fina el material que si ha sido efectivamente cribado. Cada fracción se recogió en recipientes previamente tarados y cuya pesada permite determinar la fracción en masa de cada tamaño granulométrico.



Figura 36: Tamizadoras industriales FTL-0400 con 4 tamices montados en serie.

Todos los recipientes de cada fracción granulométrica fueron depositados en el recipiente de la Tolva-Revólver hasta completar su volumen nominal de 9.2 dm³, obteniéndose así la correspondiente a cada tamaño granulométrico. Tras finalizar las medidas, las tierras fueron reincorporadas a su lugar de origen.

3. RESULTADOS

3.1 Modelación termodinámica

En esta memoria se estimó la necesidad de modelar termodinámicamente el comportamiento de los contaminantes en el medio ambiente. A continuación se presenta dicha modelación que servirá de base para justificar la dispersión y los resultados obtenidos en la caracterización radiológica del terreno.

3.1.1 Pu

A partir de las constantes termodinámicas de las reacciones de hidratación, complejación y redox del Pu (consensuados internacionalmente y recopilados en la base de datos termoquímicos de la Nuclear Energy Agency [112]) es posible modelar termodinámicamente, el comportamiento del Pu en distintos entornos. En el caso de esta memoria de investigación, el estudio se centra en una zona costera con un clima mediterráneo, por lo que se considera de interés estudiar cuál sería el comportamiento de las partículas oxidadas (PuO_2) en medio salino (agua de mar). Es importante remarcar que inicialmente era una zona de explotación agraria de secano que en los últimos 10 años se transformó en regadío y de explotación intensiva.

En primer término, será necesario estudiar cómo se produjo la oxidación y qué fase se formó en este proceso. En principio el proceso de oxidación del Pu^0 no difiere de otros procesos de oxidación de metales con estado IV de oxidación:



La estructura cristalina del PuO_2 es del tipo fluorita, con Pu^{+4} dispuestos en una red ccc y ocho aniones de O^{2-} en los intersticiales tetraédricos en una red cúbica simple. El PuO_2 es un material cerámico muy insoluble en agua cuyo punto de fusión es 2701 K y con un módulo de Young de 268 GPa, por lo que es la forma física que se emplea en muchas aplicaciones civiles del ^{238}Pu así como en la fabricación de combustible de óxidos mixtos (MOX) para centrales nucleares que permiten reciclar los isótopos de U y Pu generados en el combustible nuclear irradiado y, lo que quizás es más importante, reciclar el enorme volumen de Pu grado arma.

La Figura 37 muestra el diagrama binario de fases en equilibrio Pu-O a partir de modelos termodinámicos [113] [114] donde también se observa la existencia de Pu_2O_3 (también denominada $\text{PuO}_{1.5}$, estructura cc*) y especies PuO_{2-x} (h^* y cc, x indica que la

* Cubica Centrada en el cuerpo (BCC en terminología sajona)

solubilidad varía entre 0 - 0.5). Este último se forma fácil y rápidamente sobre las superficies de Pu⁰ formando una capa pasivante insoluble en agua y muy poco soluble en medios ácidos.

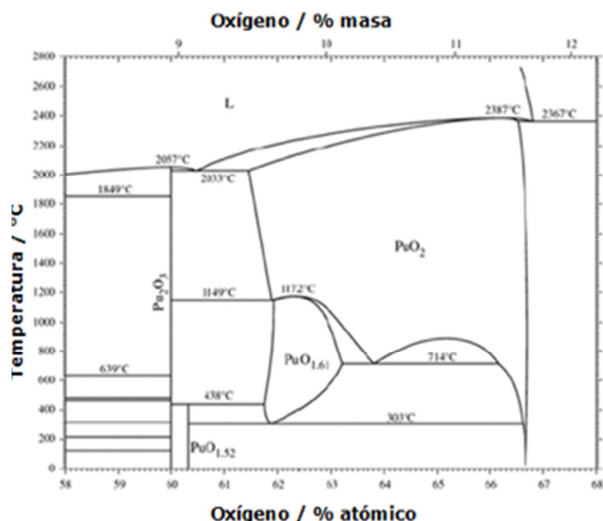


Figura 37: Diagrama de fases en equilibrio Pu-O en el intervalo 58 - 68 %_a en O [113] [114].

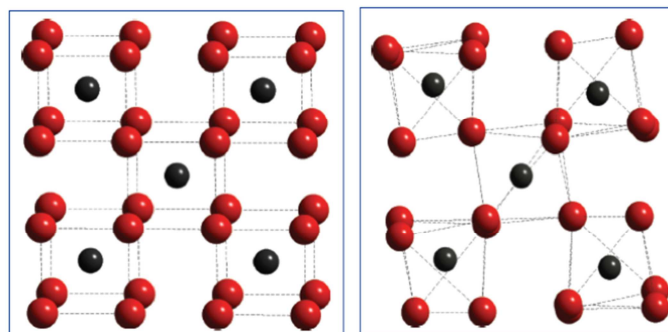


Figura 38: La estructura cristalina de los óxidos de Pu: tipo fluorita del PuO₂ (izquierda), hexagonal del Pu₂O₃ (derecha) [115].

Su color es normalmente verde oliva pero dependiendo del método de preparación también puede ser amarillo, caqui, bronceado, gris oscuro o negro. La estructura fina de la espectroscopía por absorción de rayos X sugiere que con sobreabundancia de O también existen fases PuO_{2+y} (ccc, y la solubilidad varía entre 0 - 0.26) y que se relacionan con pequeños aumentos en el parámetro de la red del PuO₂ [115].

A partir de la estructura del PuO₂ se obtiene la estructura hexagonal del Pu₂O₃ al eliminar uno de cada 4 átomos de O que rodean los átomos de Pu (Figura 38). Los parámetros de red de estos óxidos son mayores que los del Pu(s) y sus densidades en torno a 11 g·cm⁻³ son bastante inferiores a cualquiera de las formas alotrópicas del Pu. El incremento de volumen de la nueva fase lleva consigo la aparición de tensiones que provocan la escarificación del óxido (fragmentación) dejando libre una nueva superficie de Pu(s) susceptible de ser oxidada (es decir, óxido no protector) hecho que asociado al comportamiento exotérmico del proceso de oxidación del Pu(s) justifica su comportamiento pirofórico en presencia de O [116].

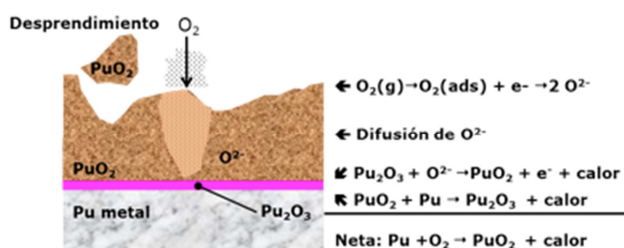


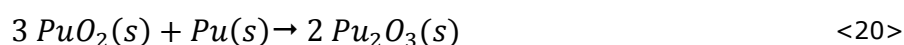
Figura 39: Oxidación y piroforicidad del Pu

El mecanismo de oxidación del resto de Pu, que quedara sin oxidar como consecuencia de la reacción exotérmica en las condiciones ambientales consideradas en esta memoria de investigación (es decir, aire seco a temperatura ambiente), se muestra en la Figura 39, el cual se inicia con la adsorción de las moléculas de O₂ en la superficie del Pu, donde se

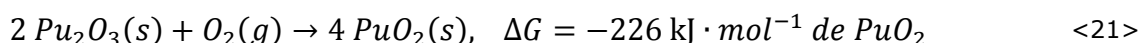
* Hexagonal

disocian y reaccionan con los cationes Pu^{4+} formando PuO_2 . La velocidad de difusión del O^{2-} determina el crecimiento parabólico de la capa de óxido hasta alcanzar cierto espesor donde se desprenden fragmentos de fase oxidada por las tensiones superficiales en la interfase. El metal expuesto se oxida rápidamente de nuevo, alcanzándose espesores de óxido de 4 - 5 μm .

Sin embargo, cuando se considera la reacción de oxidación a temperaturas más elevadas o en condiciones donde la disponibilidad de O_2 es menor (por ejemplo, en vacío o habiéndose consumido rápidamente por tener un exceso de Pu), se comprueba la existencia de una delgada capa de Pu_2O_3 , entre el metal y el óxido, debida a la autorreducción del Pu y toda la capa de óxido que pasa a ser Pu_2O_3 :



En cuanto se dan condiciones oxidantes, esta especie se oxida rápidamente formando PuO_2 con una notable emisión de calor.



Este mecanismo explica el comportamiento pirofórico del Pu al desprenderse un fragmento de PuO_2 y dejar al descubierto la delgada capa de Pu_2O_3 [117]. Al alcanzar la temperatura de 773 K, la capa de óxido se inflama espontáneamente en cualquier forma de presentación, pero son las partículas con una mayor reactividad superficial (es decir, mayor área superficial) tales como polvo, limaduras o láminas finas las que pueden arder sobre los 400 K [118], en particular en ambientes húmedos en los que se pueden formar hidruros que aumentan considerablemente el volumen y pulveriza el metal. La Tabla XIV resume las reacciones de oxidación del Pu metálico que deben tenerse en cuenta en el almacén tanto del Pu^0 como de sus óxidos [119].

Tabla XIV: Reacciones de oxidación del Pu metálico.

Forma del metal y condiciones ambientales	Reacción
No dividido a temperatura ambiente	Relativamente inerte, se oxida lentamente
No dividido en humedad y/o alta temperatura	Rápidamente forma PuO_2
Dividido a temperatura ambiente	Rápidamente forma PuO_2
Diámetro de partículas < 1 mm	Arde espontáneamente a unos 423 K
Diámetro de partícula > 1 mm	Arde espontáneamente a unos 773 K

A partir de todo lo anterior se puede concluir que inicialmente, en el estadio posterior al accidente, la fase mayoritaria en la que se encontraba el Pu era PuO_2 cristalino (en adelante $\text{PuO}_2(\text{cr})$). El paso siguiente es determinar la estabilidad de dicha fase en las condiciones ambientales y cómo esto afecta a su movilidad en el medioambiente [120].

Para la realización de los diagramas de estabilidad (Pourbaix) del Pu se utilizó el programa Eq-Diagr [121], considerando como lixivante agua de mar [122] (es decir, $[\text{Cl}^-] = 0.546 \text{ mM}$, $[\text{SO}_4^{2-}] = 28 \text{ mM}$, $[\text{CO}_3^{2-}] = 10 \text{ mM}$, fuerza iónica = 1.2 M). En este modelo no se tiene en cuenta la presencia de cationes en disolución, ya que el modelo no considera la formación de soluciones sólidas o fases mixtas que puedan controlar la solubilidad del Pu.

Antes de proceder a la discusión del modelo propuesto en esta memoria para la justificación del Pu, es importante remarcar que el Pu es un material muy insoluble. Si se tiene en cuenta la definición de Pourbaix de los materiales pasivados "se considera que un material está pasivado cuando su solubilidad es menor de $10 \mu\text{M}$ " [123]. Del modelo propuesto a partir de la base de datos de la NEA-OCDE [112], se constata que la solubilidad del Pu en condiciones estándares es inferior a 1 pM, por lo que se consideró más ilustrativo considerar una concentración inicial de Pu de 100 pM. Los resultados obtenidos se muestran en la Figura 40.

Como se ha indicado en el apartado 1.3.1, las condiciones ambientales redox y de pH del entorno del análogo antropogénico considerado (Palomares) son oxidantes (es decir $0.2 \text{ V} < E_h < 0.5 \text{ V}$) y el intervalo de pH entre 6 - 8 para una temperatura media de 300 K. Este intervalo de condiciones ambientales está marcado en la Figura 40 como un rectángulo en las figuras obtenidas en la modelización.

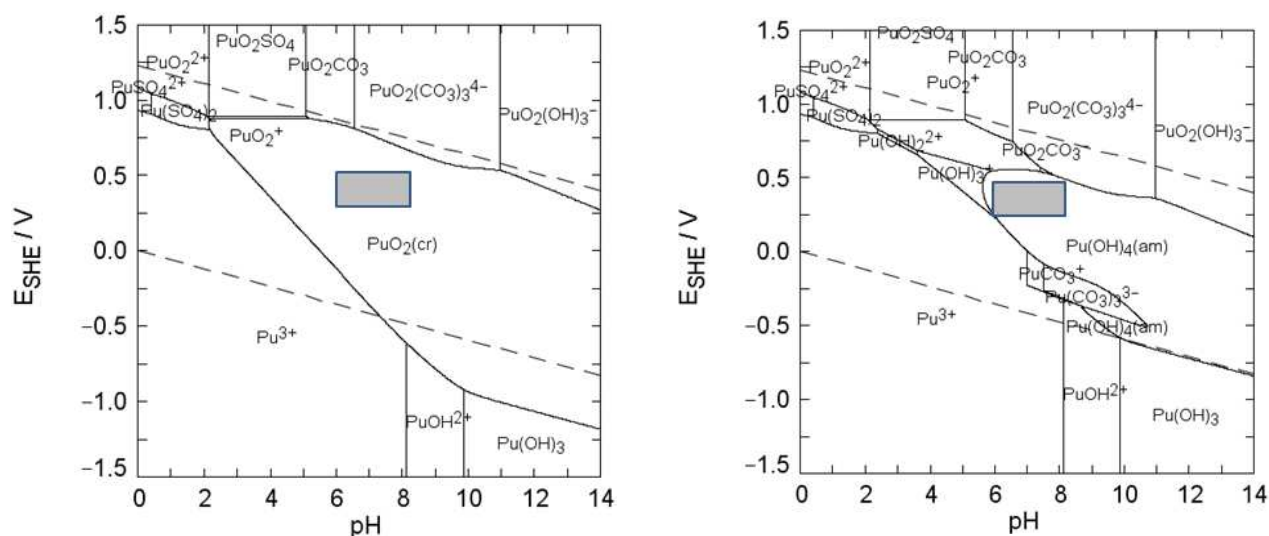


Figura 40: Diagramas de Pourbaix para el Pu en disoluciones acuosas con composición típica del agua marina [122], asumiendo la presencia (izquierda) o ausencia de PuO₂(cr) (derecha). El área sombreada corresponde a los intervalos de variación encontrados en aguas naturales.

El primer análisis del modelo propuesto para el Pu (Figura 40, izquierda) demuestra que para las condiciones ambientales consideradas el Pu está pasivado, y es insoluble en dicho medio, hecho que demuestra la poca movilidad del Pu en el terreno como consecuencia de procesos de disolución originados por las lluvias. Como se puede observar para esas condiciones ambientales la fase estable mayoritaria es el PuO₂(cr), fase que se formó como consecuencia de la oxidación del Pu (comentadas con anterioridad en este apartado).

Esto justificaría la estabilidad de esta fase y su poca reactividad con el medio, pero una segunda pregunta que se plantea es "¿se pueden producir fases secundarias en la superficie del $\text{PuO}_2(\text{cr})$ como consecuencia de la alteración en el medio ambiente?" Para responder a esta pregunta se realizó un segundo modelo en el que para estudiar si se produce o no alteración del $\text{PuO}_2(\text{cr})$, se omitió esta fase en el modelo, ya que su baja solubilidad controlaba la concentración en solución. Los resultados obtenidos se muestran en la Figura 40, derecha. El análisis del modelo muestra que, al igual que en el caso anterior, para las condiciones ambientales consideradas, el Pu es estable y está controlado por una fase secundaria estable $\text{PuO}_2(\text{am})$, que si bien tiene una solubilidad ligeramente superior a la anterior (1 - 2 órdenes de magnitud en función del pH en las condiciones ambientales consideradas), confirma la muy baja movilidad del Pu (diseminación de la pluma de contaminación) como consecuencia de las lluvias estacionales que se pudieran producir. Además, el modelo propuesto demuestra que se podría producir la formación de una fase secundaria superficial, pero que esta impediría, también la migración del Pu en el ecosistema.

3.1.2 Am

En el caso concreto del análogo antropogénico objeto de estudio en esta memoria, el Am existente proviene de la desintegración radiactiva del ^{241}Pu . Esto implica que inicialmente aparecerá dentro de la fase $\text{PuO}_2(\text{cr})$ formando una solución sólida sustitucional (es decir, ocupando las mismas posiciones en la red cristalina que el Pu desintegrado, ver la Figura 38) que, como se ha comentado en puntos anteriores (ver 1.2.3), no supondrá una distorsión en la red cristalina, por lo que no será de esperar la aparición de tensiones residuales que produzcan fracturas y generación de nuevas superficies en contacto con el medio ambiente. Por tanto, la liberación del Am hacia el medio ambiente en las condiciones de contorno consideradas para el caso del Pu (ver 1.2.1) estará condicionada por la propia lixiviación de la matriz $\text{PuO}_2(\text{cr})$, luego será muy baja.

Como en el caso del Pu, se ha modelizado la estabilidad del Am en condiciones ambientales. En la Figura 41 se muestra el diagrama de Pourbaix considerando las mismas condiciones ambientales y una concentración de Am de 100 nM.

El modelo termodinámico propuesto en este trabajo de investigación (Figura 41) demuestra que en las condiciones ambientales consideradas el Am muestra una mayor solubilidad que el Pu. Si se considera el proceso de lixiviación del $\text{PuO}_2(\text{cr})$, desde el punto de vista termodinámico es de esperar una disolución congruente del Am, que se disolverá hasta que se alcance su valor de solubilidad.

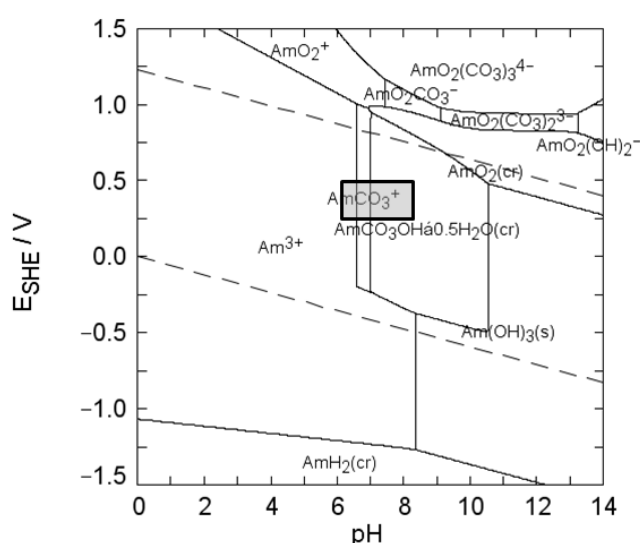


Figura 41: Diagrama de Pourbaix para el Am en disoluciones acuosas con composición típica del agua marina [122]. El área sombreada corresponde a los intervalos de variación encontrados en aguas naturales.

Es importante resaltar que los modelos propuestos en esta memoria no consideran la formación de fases mixtas y/o coprecipitadas, por lo que precipitará una fase secundaria pura "AmCO₃OH·0.5H₂O" que controlará su solubilidad. Para el intervalo de las condiciones ambientales consideradas en esta memoria, la solubilidad de esta fase siempre es inferior a los 10 µM, lo que justificaría junto con la formación de la fase PuO₂(am) la pasivación de las partículas diseminadas en la superficie del terreno y, por ende, la baja migración de los contaminantes en este medio ambiente.

Como se demostrará en apartados posteriores, mediante los resultados experimentales de esta memoria, estos modelos termodinámicos sirven de base para justificar la baja movilidad observada del Am y del Pu en el análogo antropogénico objeto de estudio.

3.2 Calibración y puesta a punto de equipos

3.2.1 Eficiencia del término fuente en medidas dinámicas

Esta eficiencia, sólo depende del término fuente y de la configuración geométrica de la medida pero es independiente del tipo de detector.

La contaminación en forma de partículas y fragmentos descrita en el apartado 1.3.2 y su escasa movilidad vertical indicada en el apartado 1.2.1 permite asumir la hipótesis de una distribución uniforme de las partículas radiactivas más finas con diámetros < 1 µm en la superficie del terreno y hasta unos cm de profundidad. No obstante y en especial en las zonas con mayor concentración de actividad, no será infrecuente encontrar partículas de mayor tamaño e incluso fragmentos con una actividad total de cientos e incluso miles de Bq.

El campo de radiación originado por una fuente radiactiva superficial depende de su geometría (radio y espesor), su distribución en profundidad y su composición química. La influencia de estos parámetros debe considerarse en la configuración geométrica del detector sobre el terreno, como se indica en la Figura 42, donde el eje de un detector FIDLER se sitúa perpendicularmente a una altura h sobre el terreno contaminado con ²⁴¹Am de radio r y espesor e , siendo d la distancia entre sus ejes. La composición química del suelo fue la denominada Dirt1 (H: 2.2 %, O: 57.5 %, Al: 8.5 %, Si :26.2 %, Fe: 5.6 %) con una densidad de 1.6 g·cm⁻³ [124] .

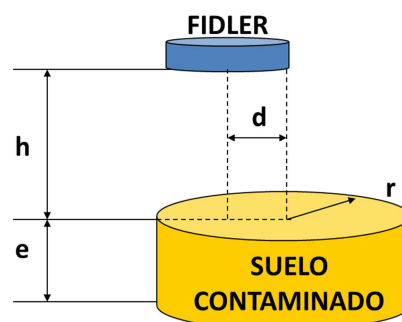


Figura 42: Configuración geométrica de un FIDLER para la medida sobre un suelo contaminado.

El flujo (nº de fotones por unidad de superficie y tiempo) originado por el término fuente (²⁴¹Am) y que alcanza al detector se ha estudiado con el código de cálculo Microshield® [5]. La incertidumbre relativa de los cálculos se estima que se sitúe por debajo del 5 % [125].

En la Figura 43 se muestran los resultados de flujo de fotones obtenidos para dos alturas de medida sobre el terreno (5 y 10 cm) variando el espesor del término fuente entre 1 – 15 cm, su radio entre 5 – 100 cm y el desplazamiento entre ejes hasta 150 cm.

Como se puede observar a partir de estos resultados, el espesor del término fuente tiene una influencia en el flujo aumentando hasta alcanzar un valor constante a los 8 cm de espesor; hecho que indica que los fotones emitidos son autoabsorbidos para fuentes con un grosor mayor. Este patrón se repite independientemente del radio, si bien los valores del flujo aumentan con este segundo parámetro.

Sin embargo, el radio del término fuente produce un incremento del flujo de un modo notable en los primeros 20 cm, para proseguir incrementándose más suavemente hasta los 50 cm y a partir de este valor, los resultados obtenidos presentan un crecimiento asintótico creciente. De los resultados obtenidos se deduce que la dimensión lateral del campo de radiación se extiende hasta esos 50 cm; por lo tanto, la variación del flujo con el radio es muy similar para los espesores a partir de los 5 cm, siendo, de hecho, casi idéntica para el intervalo entre 10 - 15 cm, lo que confirma el espesor de autoabsorción en el intervalo entre 8 - 10 cm.

El desplazamiento entre los ejes del detector y el término fuente no parece mostrar influencia en el flujo hasta que el desplazamiento alcanza un valor similar a la mitad del radio de la fuente, incrementos del desplazamiento respecto de dicho valor producen una disminución según se alejan los ejes.

Cuando se evalúa la influencia de la altura de medida en el flujo se observa un comportamiento inversamente proporcional, es decir, disminuye al aumentar la altura entre un 10 - 50 %, en función del espesor y del radio, pero manteniendo los patrones antes descritos.

Al objeto de poder estudiar y evaluar la autoabsorción de los fotones de 60 keV se realizaron otra serie de modelizaciones con Microshield®, considerando que el flujo emitido por un término fuente de 100 cm de radio y 1 cm de espesor de suelo con composición Dirt1 que va siendo recubierto con una capa del mismo material sin contaminar, de modo que la altura del detector sobre el terreno es constante ($h = 5$ cm, ver esquema del modelo en la Figura 44).

Los resultados obtenidos del modelo se muestran en la Figura 44 derecha, donde se puede observar que el comportamiento exponencial de la autoabsorción esperado se reduce en un factor 10; cuando se considera un flujo con sólo 3 – 4 cm de recubrimiento con suelo limpio el factor obtenido es de 100 y, por último, si se consideran 9 cm y 14 cm el factor es de 1000. Una de las primeras conclusiones de este estudio es que es necesario considerar la distribución de la contaminación en profundidad y el espesor del posible recubrimiento no contaminado en la definición del término fuente. En principio, al menos en las zonas próximas a los puntos de impacto nº 2 y 3 la [^{241}Am] en los primeros 15 cm de suelo es aproximadamente constante [39]. No obstante, en el plan de medidas descrito en la sección 1.4.2, se incluye un plan de muestreo de suelo superficial que permitirá confirmar esta hipótesis.

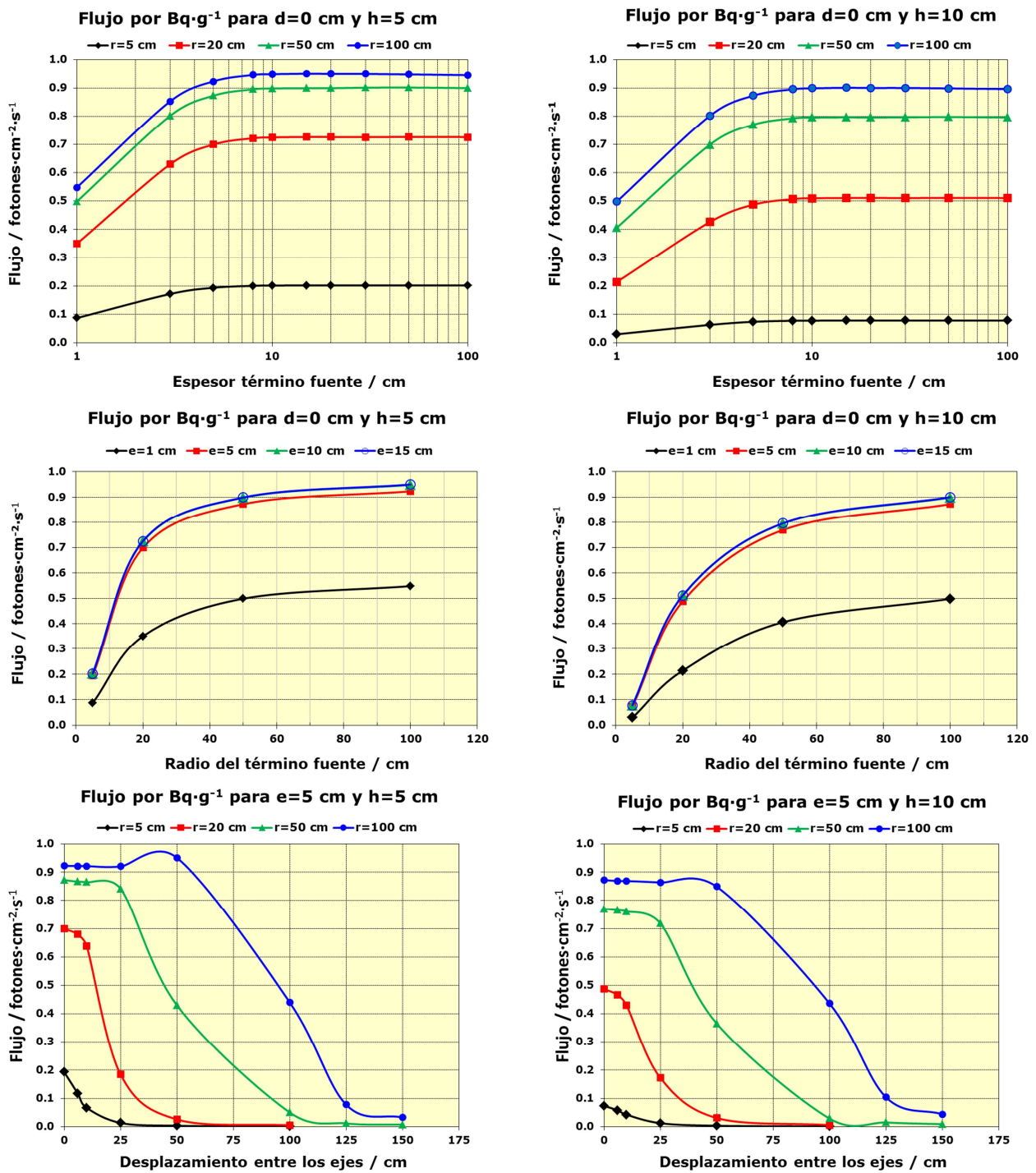


Figura 43: Variación del flujo de fotones en el centro del FIDLER con el espesor (fila superior), el radio (fila intermedia) y el desplazamiento entre ejes (fila inferior) del término fuente para las alturas de medida de 5 cm (columna izquierda) y 10 cm (columna derecha). Las líneas suavizadas entre los puntos experimentales no expresan correlación entre las variables y solo pretenden facilitar la interpretación de las gráficas.

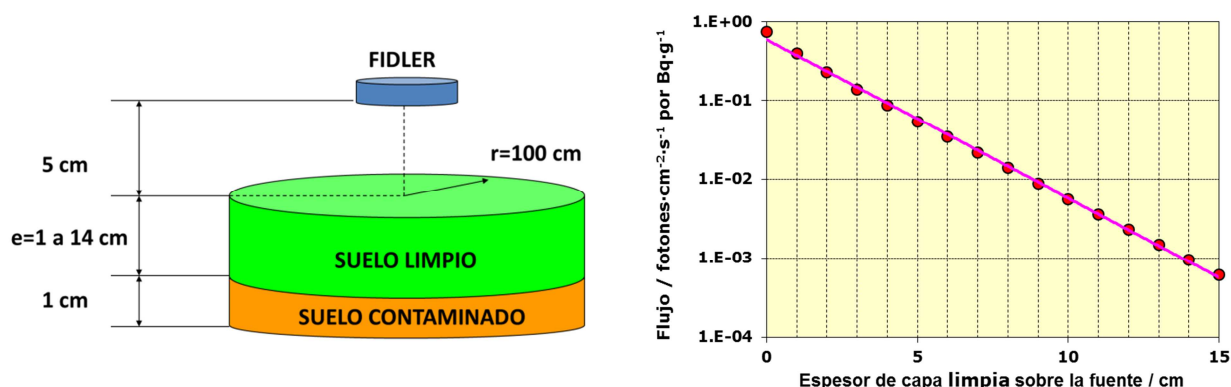


Figura 44: Autoabsorción de los fotones de 60 keV en función del espesor de una capa limpia del mismo suelo que recubre el término fuente.

A la vista de los resultados obtenidos en la modelización y de las caracterizaciones radiológicas ya realizadas en el emplazamiento, se puede describir el término fuente de la contaminación de los suelos en Palomares como una distribución homogénea de la actividad de ^{241}Am en un cilindro de 100 cm de diámetro y 15 cm de espesor compuesto por un suelo de referencia Dirt1 (H: 2.2 %, O: 57.5 %, Al: 8.5 %, Si: 26.2 %, Fe: 5.6 %) con una densidad de $1.6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$. La altura sobre el suelo seleccionada para efectuar las medidas in-situ es de 5 cm y de la Figura 44 se obtiene que el flujo es $0.9 \pm 0.1 \text{ fotones}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ por $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, que es constante en un radio de 50 cm. Multiplicando el flujo por la superficie del FIDLER (116.9 cm^2), resulta la eficiencia debida al término fuente de actividad para las medidas con este instrumento [84]:

$$\mathcal{E}_A = 105 \pm 10 \text{ fotones}\cdot\text{s}^{-1} \text{ por Bq}\cdot\text{g}^{-1} (k = 2)$$

3.2.2 Eficiencia del instrumento FIDLER

La eficiencia instrumental dependerá de la respuesta individual de cada detector a las radiaciones de interés, en este caso los fotones de 59.5 keV emitidos por el ^{241}Am con una probabilidad del 35.9 % por desintegración. Esta respuesta se determina experimentalmente exponiendo cada detector a fuentes puntuales certificadas en geometrías conocidas como se muestra en la Figura 45, donde las fuentes situadas sobre el terreno se desplazan radialmente distancias conocidas desde el eje del detector y se varía la altura del detector sobre el terreno. El tiempo de medida en cada posición ha sido suficiente para considerar que el error por el recuento obtenido fuera inferior al 0.1 %.

La eficiencia del FIDLER es obviamente mayor cuanto menor es la distancia al suelo y no cambia más del 10 % en el círculo interno de 3 cm de diámetro alrededor del eje, disminuyendo hasta el 50 % cuando la fuente se coloca justo en el borde del detector ($r = 6 \text{ cm}$) y decreciendo aún más para mayores distancias. Se concluye, por tanto, que el FIDLER es sensible únicamente al término fuente que esté dentro de la proyección de la sección del detector.

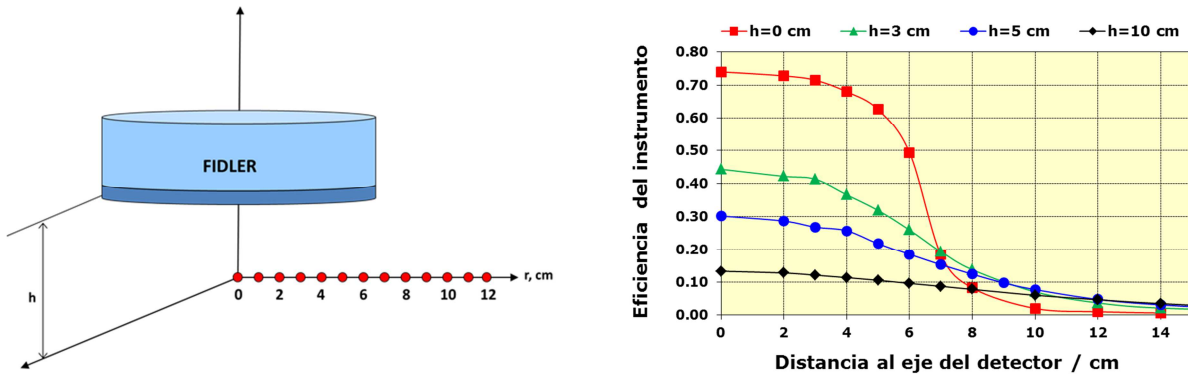


Figura 45: Eficiencia de un FIDLER para los fotones de 59.5 keV provenientes de una fuente puntual certificada de ²⁴¹Am en función del desplazamiento respecto al eje del detector y para varias alturas *h* sobre el terreno.

Una aproximación a la eficiencia del instrumento de área A_I consiste en expresarla como la suma de las eficiencias experimentales en cada distancia ϵ_i ponderada por el área de las coronas angulares correspondientes a_i de radio interior r_i y anchura w_i (Figura 46 [126]):

$$\epsilon_I = A_I \frac{\sum_{i=1}^n \epsilon_i \cdot a_i}{\sum_{i=1}^n a_i} = A_I \frac{\sum_{i=1}^n \epsilon_i \cdot \pi \cdot (w_i^2 + 2 \cdot r_i \cdot w)}{\sum_{i=1}^n a_i} \tag{22}$$

que se expresa en unidades de cm^2 por fotón. Nótese que si se sitúa la fuente más externa justo en el límite del detector, $A_I = \sum_{i=1}^n a_i$, la expresión <22> se simplifica a:

$$\epsilon_I = \sum_{i=1}^n \epsilon_i \cdot \pi \cdot (w_i^2 + 2 \cdot r_i \cdot w) \tag{23}$$

Para la calibración de cada instrumento FIDLER se emplearon fuentes certificadas de ²⁴¹Am con incertidumbres relativas inferiores al 4 %, que se colocaban sucesivamente a seis distancias desde el eje del detector (0, 2, 3, 4, 5 y 6 cm) y a una altura $h = 5$ cm. El tiempo de medida en cada posición fue el suficiente para considerar que el error por el recuento obtenido fuera inferior al 0.1 % y la incertidumbre en la medida de longitudes fue de 0.5 mm, con lo que la incertidumbre relativa de eficiencia instrumental es del 5 %. La Tabla XV recopila los resultados de la calibración experimental de dos detectores FIDLER para la eficiencia del instrumento, que es adimensional ya que es el cociente del número cuentas detectadas por el número de fotones emitidos, y cuyo producto por la eficiencia de la fuente (obtenida en el apartado 3.2.1) proporciona la eficiencia total que se emplea para calcular la [²⁴¹Am] con la expresión <15>.

Tabla XV: Resultados de la calibración instrumental de dos FIDLER y cálculo de la eficiencia total para el modelo asumido de la contaminación de los suelos en Palomares. Las incertidumbres se expresan con un intervalo de confianza del 95 % ($k=2$)

FIDLER nº	$\epsilon_I /$ cuentas por fotón	$\epsilon_A /$ Fotones·s ⁻¹ por Bq·g ⁻¹	$\epsilon_I \cdot \epsilon_A /$ cps por Bq·g ⁻¹
SAT-18	0.62 ± 0.03	105 ± 10	65 ± 4
SAT-19	0.58 ± 0.03		61 ± 4

3.2.3 Resolución espacial en las medidas dinámicas con FIDLER

Las medidas dinámicas consisten en recorrer el terreno con el detector a una altura determinada y a una velocidad "v" aproximadamente constante como se ilustra en la Figura 47. Las condiciones específicas requieren un compromiso entre la resolución espacial (superficie del terreno para la que la medida es representativa) y el límite de detección de la medida radiológica, que debe ser inferior a los criterios radiológicos establecidos para la caracterización.

Partiendo de la base de que el FIDLER es sensible únicamente en su sección circular de radio r_{FIDLER} , durante la distancia recorrida s en el tiempo de medida t se ha barrido bajo el detector una superficie que es igual a:

$$\pi \cdot r_{FIDLER}^2 + v \cdot t \cdot 2 \cdot r_{FIDLER} \tag{24}$$

Aceptando la hipótesis de distribución homogénea de la contaminación, el flujo es constante en un radio que es aproximadamente la mitad del radio del término fuente, que en las condiciones asumidas (e = 15 cm, r = 100 cm, h = 5 cm) será de 50 cm. Así mismo, esta medida será representativa de la siguiente superficie del término fuente):

$$\pi \cdot \frac{r^2}{4} + v \cdot t \cdot r \tag{25}$$

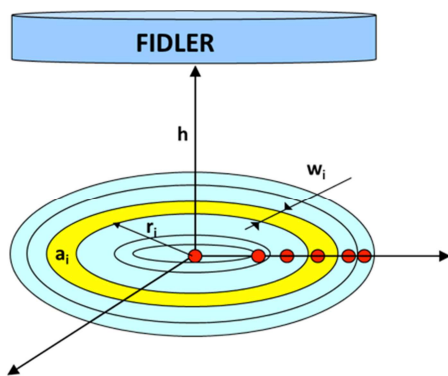


Figura 46: Calibración de la eficiencia como suma ponderada de las eficiencias en varias coronas circulares. Los círculos indican las posiciones de las fuentes puntuales, situándose la más externa en la proyección del borde del detector.

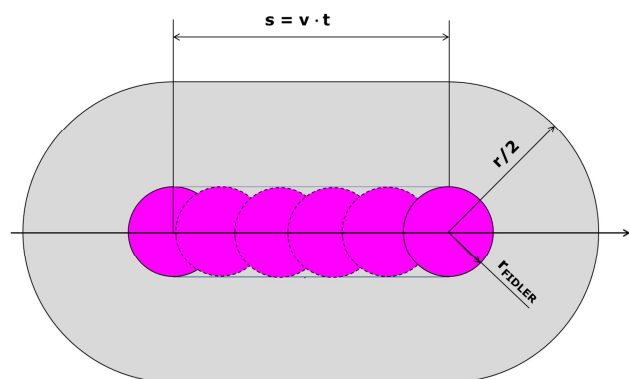


Figura 47: Medida dinámica de suelos con un FIDLER, que es representativa de la superficie del término fuente que aparece sombreada.

Los resultados obtenidos y recopilados en la Tabla XVI demuestran que la superficie caracterizada con una medida de FIDLER es 0.8 - 1.0 m² para tiempos de medida inferiores a 10 s y velocidades de hasta 5 m·s⁻¹.

Tabla XVI: Superficie caracterizada en m² para un término fuente homogéneo de 15 cm de espesor y 100 cm de radio

Tiempo de medida / s	Velocidad / m·s ⁻¹				
	0.1	0.5	1	2	5
1	0.786	0.790	0.795	0.805	0.835
2	0.787	0.795	0.805	0.825	0.885
5	0.790	0.810	0.835	0.885	1.035
10	0.795	0.835	0.885	0.985	1.285
30	0.815	0.935	1.085	1.385	2.285
60	0.845	1.085	1.385	1.985	3.785
300	1.085	2.285	3.785	6.785	15.785

Por otro lado, la Tabla XVII muestra los valores de la CAMD en función del tiempo de medida y de la tasa de recuento del fondo (que en Palomares varía entre 10 y 50 cps), calculados a partir de la expresión <18> y los valores de las eficiencias de la fuente y del instrumento obtenidos anteriormente. Estos valores son inferiores a los criterios radiológicos expuestos en la sección 1.4.1, lo que indica que el FIDLER es suficientemente sensible para efectuar las medidas en campo requeridas.

Tabla XVII: Concentración de actividad de ²⁴¹Am mínima detectable (CAMD), en Bq·g⁻¹

Tiempo de medida / s	Tasa de recuento del fondo / cps				
	10	20	30	40	50
1	0.275	0.371	0.445	0.507	0.562
2	0.186	0.254	0.306	0.350	0.388
5	0.112	0.155	0.188	0.216	0.241
10	0.078	0.108	0.131	0.151	0.168
30	0.044	0.061	0.075	0.086	0.096
60	0.031	0.043	0.053	0.061	0.068
300	0.014	0.019	0.023	0.027	0.030

De todos los resultados obtenidos se puede definir la metodología óptima para la realización de las medidas dinámicas, es decir: manteniendo el detector a una altura entre 5 y 10 cm sobre el terreno, recorriendo el terreno a una velocidad en el intervalo entre 0.5 - 2 m·s⁻¹ y empleando un tiempo de medida de 2 s. En estas condiciones, cada medida será representativa de una superficie aproximada del terreno de 1 m², la CAMD es inferior a 0.4 Bq·g⁻¹ y la incertidumbre global relativa de las medidas de [²⁴¹Am] es del orden del 30 %.

3.2.4 Medidas de actividad en muestras de tierras

Para la calibración en eficiencias se emplearon fuentes puntuales certificadas así como varias fuentes certificadas cilíndricas similares a los recipientes (diámetro 51 mm) y varios espesores desde 3 hasta 50 mm (Tabla XVIII). Estas fuentes fueron fabricadas en la Unidad de Residuos de Baja y Media Actividad del CIEMAT disolviendo una actividad conocida de ²⁴¹Am en una resina inerte que, tras homogeneizar la solución, se endurece en un molde

con las dimensiones deseadas, obteniendo una matriz sólida con una densidad aproximada de $1.2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ [127].

Los discos nº 1 y 2 se utilizaron para el calibrado de muestras en la geometría de las cápsulas Petri de 47 mm de diámetro (divisiones y fracciones granulométricas), además de para estudiar la influencia del espesor de la fuente y su posición en el recipiente de las muestras inalteradas. La Figura 48 izquierda muestra el modelo utilizado para estudiar la variación en la eficiencia de los detectores para los fotones de 59.5 keV emitidos por el ^{241}Am con el espesor de la fuente, e , su posición dentro del recipiente cuyo espacio es rellenado con una capa de tierra limpia, h , y la densidad aparente de la tierra, ρ ($1.2 - 1.5 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$) [128]. La Figura 48 derecha presenta las eficiencias obtenidas con el FIDLER y un detector de HP-Ge al exponerlos en la posición I y $h = 0 \text{ mm}$ a las fuentes listadas en la Tabla XVIII, apreciándose la fuerte influencia debida a la autoabsorción exponencial de los fotones de 60 keV en el propio espesor de la muestra y que hace que la eficiencia para la fuente de 50 mm de espesor sea aproximadamente la tercera parte que la eficiencia de la fuente puntual. Así mismo, en la Figura 48 se aprecia que el FIDLER es un 30 % más eficiente que el HP-Ge a pesar de que la distancia fuente-detector sea unas 10 veces mayor.

Tabla XVIII: Fuentes radiactivas certificadas para la calibración en eficiencias de los sistemas de espectrometría γ usados en la determinación de la [^{241}Am] en muestras inalteradas de suelos superficiales y sondeos. Las incertidumbres se expresan con un intervalo de confianza del 95 % ($k = 2$).

Fuente	Masa / g	Espesor / mm	Diámetro / mm	Densidad / $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	Actividad ^{241}Am / Bq
Puntual	No disponible	No disponible	No disponible	No disponible	$3.05\text{E}3 \pm 2\%$
Filtro	No disponible	1.00 ± 0.05	45 ± 1	No disponible	$4.29\text{E}1 \pm 2\%$
Disco nº 1	$7.07 \pm 0.14\%$	3.3 ± 0.1	49.2 ± 0.1	$1.12 \pm 3.04\%$	$1.21\text{E}4 \pm 10.27\%$
Disco nº 2	$7.80 \pm 0.13\%$	3.4 ± 0.1	49.3 ± 0.1	$1.22 \pm 2.95\%$	$1.45\text{E}4 \pm 10.27\%$
Cilindro nº 1	$112.4 \pm 0.1\%$	25.0 ± 0.1	50.0 ± 0.1	$1.14 \pm 3\%$	$1.04\text{E}4 \pm 11.63\%$
Cilindro nº 2	$56.5 \pm 0.2\%$	50.0 ± 0.1	50.0 ± 0.1	$1.15 \pm 2\%$	$1.04\text{E}4 \pm 11.64\%$

Al alejar la fuente del detector y anteponer un espesor h de tierra limpia, la eficiencia disminuye exponencialmente en ambos detectores hasta un factor 50 como se muestra en los gráficos superiores de la Figura 49. En consecuencia, es necesario considerar la distribución de la actividad en las muestras inalteradas para aplicar el valor de eficiencia correcto. Para ello se estudió el cociente I/S entre las medidas independientes tomadas en cada base del recipiente, obteniendo los gráficos inferiores que indican el decrecimiento

exponencial del cociente de hasta un factor 3 000 con el espesor de la capa limpia interpuesta entre el detector y la fuente. Ello significa que el cociente I/S es un parámetro muy sensible a la posición y tamaño de la fuente en el recipiente, disminuyendo cuando aumentan los espesores de la capa limpia y de la fuente, aproximándose a la unidad para una distribución homogénea de la actividad. Por simetría, un valor I/S inferior a la unidad denota que la fuente está más cerca del lado S que del I. En la práctica se ha empleado el valor $\max(S/I, I/S)$, que por definición es mayor o igual que 1.

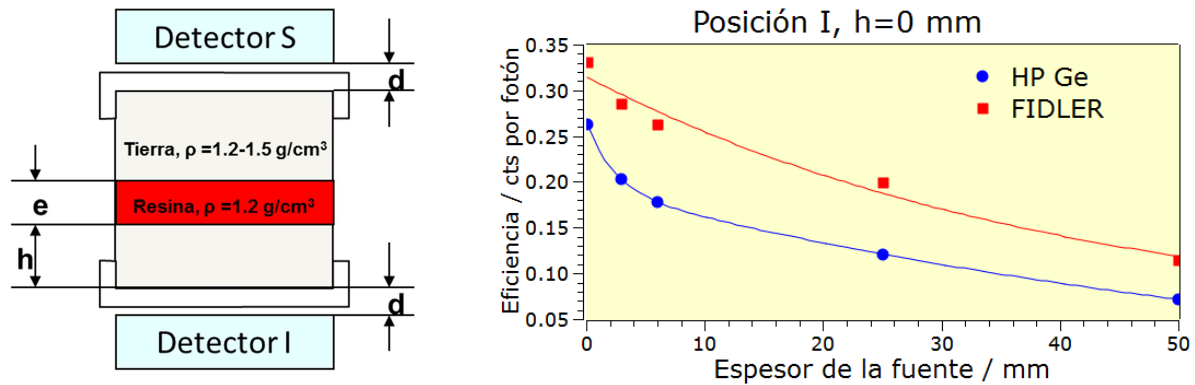


Figura 48: Variación de la eficiencia para fotones de 59.5 keV de un detector HP-Ge y un FIDLER con el espesor de las fuentes certificadas de ^{241}Am .

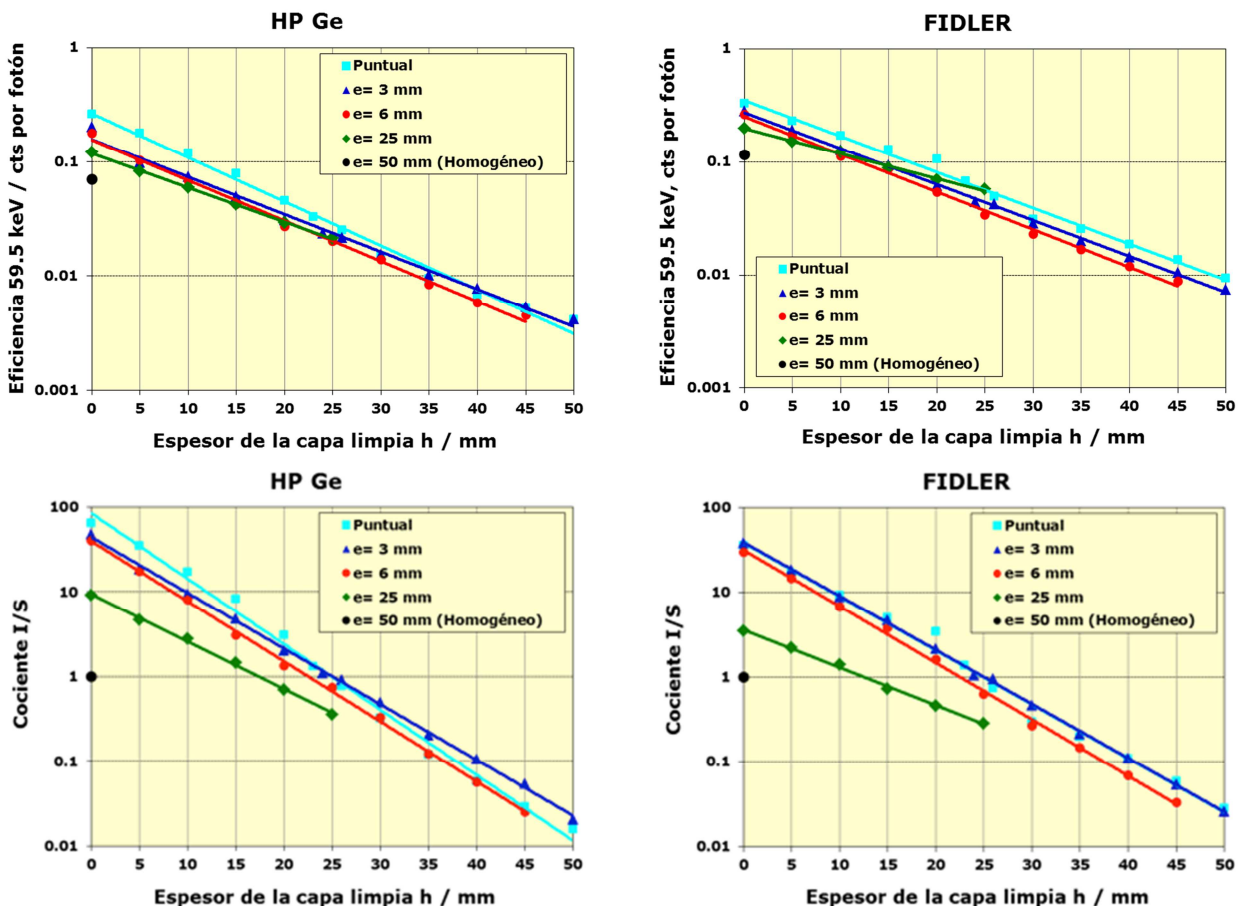


Figura 49: Variación de la eficiencia para fotones de 59.5 keV (gráficas superiores) y del cociente I/S para un detector HP-Ge y un FIDLER con el espesor de la capa de tierra limpia entre ellos y las fuentes certificadas de ^{241}Am de distinto espesor.

Basado en el comportamiento exponencial decreciente similar para la eficiencia y el cociente I/S con los espesores de las fuentes y la capa de tierra limpia interpuesta, se ha estudiado la relación potencial $\epsilon = a(I/S)^b$ mediante el análisis de regresión lineal de sus logaritmos "log(ϵ) = log(a)+b·log(I/S)" [129], como se ilustra en las figuras superiores de la Figura 50 y cuyos resultados aparecen en la Tabla XIX. Para ambos detectores se obtiene que la eficiencia a 59.5 keV es proporcional a la raíz cuadrada del cociente I/S con un coeficiente de determinación superior a 0.91 que justifica la relación propuesta para las más de 40 observaciones consideradas por detector. Los modelos ajustan bien los datos de las fuentes puntuales pero tienden a sobrestimar la eficiencia de las fuentes más delgadas y a subestimar la de las fuentes con mayor espesor, obteniendo el peor resultado en el caso de la fuente homogénea (-60 %). Aunque el valor medio de los residuos normalizados es de -3 %, su intervalo varía desde -60 % hasta +40 % y su desviación típica es del 23 %; valor empleado para la incertidumbre relativa de la eficiencia en los cálculos de la actividad en las muestras inalteradas, presentados en esta memoria.

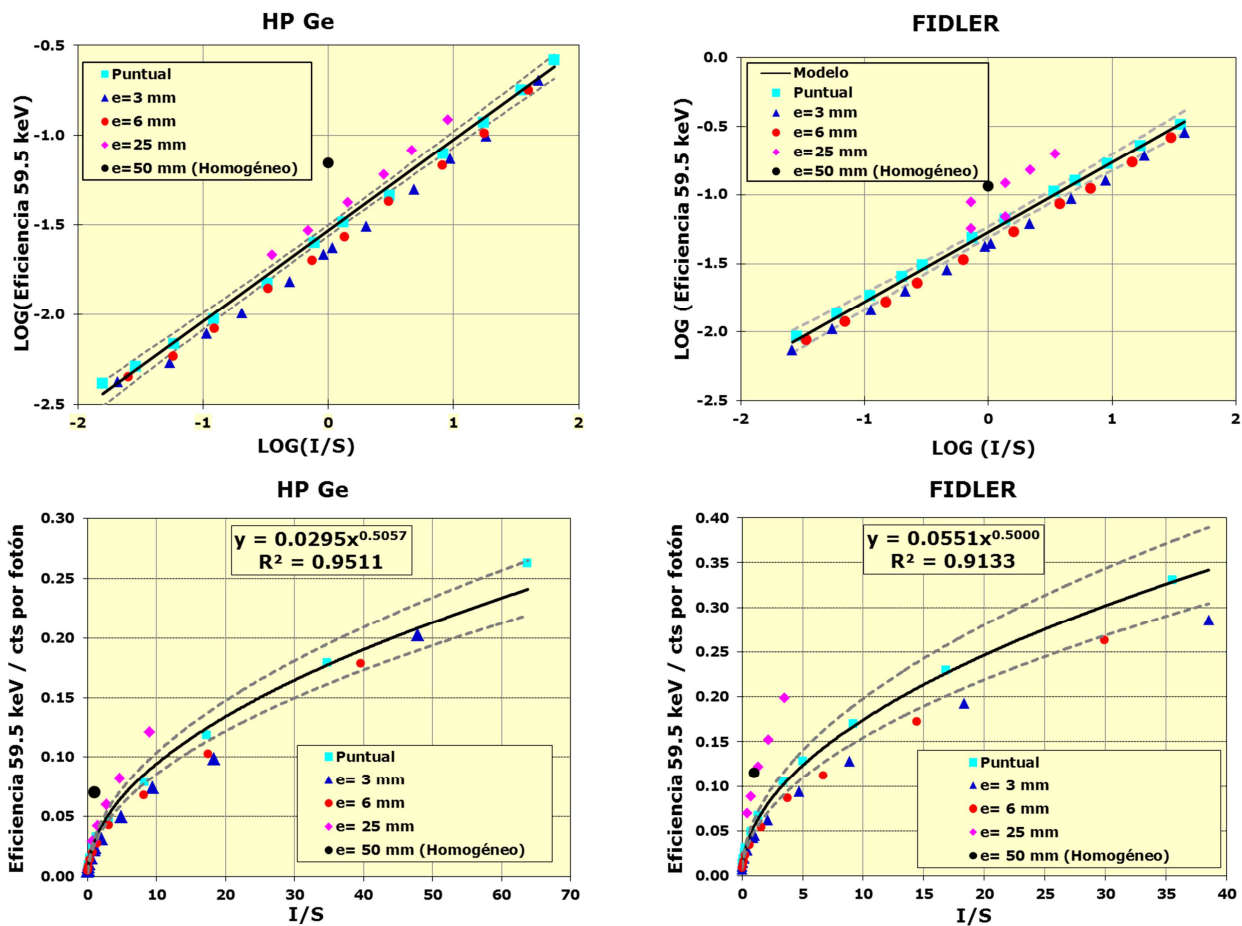


Figura 50: Relación lineal entre los logaritmos de la eficiencia de los detectores HP Ge y FIDLER para los fotones de 59.5 keV y el cociente I/S (gráficas superiores) que explican el modelo potencial para la relación entre ambos parámetros (gráficas inferiores). Las líneas discontinuas muestran el intervalo de confianza del 95 % para los modelos propuestos.

En la Figura 51 se muestran los resultados experimentales obtenidos de la distribución de actividad de ^{241}Am en función de la profundidad en el recipiente de las muestras inalteradas. Para ello el contenido de varias muestras ya medidas y con max(S/I, I/S) conocido fue cuidadosamente separado en cápsulas Petri de 47 mm de diámetro hasta

alcanzar un espesor de 6 mm, que fueron medidas en un detector HP-Ge de modo que la incertidumbre de recuento fuera inferior al 1 % y la actividad mínima detectable fuera inferior a 1 Bq. En primer lugar, hay que mencionar el amplio intervalo en la actividad medida en estas porciones (0 - 8 000 Bq) que ilustra la variabilidad de la contaminación en el suelo superficial. Como se aprecia en las dos filas superiores de la Figura 51, cuando $\max(S/I, I/S) < 2$ la distribución de actividad es cuasi-homogénea, es decir, se concentra la actividad en la mitad del recipiente. En las siguientes filas se observa que el valor de $\max(S/I, I/S)$ aumenta cuando la actividad de la muestra está más cercana a uno de los extremos del recipiente, alcanzándose incluso un valor de 29 para dicho índice. Nótese también que en algunas muestras la actividad de ^{241}Am está contenida en uno o dos espesores de 5 mm, lo que puede indicar que la contaminación se encuentre en forma de una única partícula.

Tabla XIX: Resultados del análisis de regresión lineal y modelos potenciales para la relación entre el cociente I/S y la eficiencia a 59.5 keV de los detectores HP Ge y FIDLER.

	Modelo: $\epsilon = a (I/S)^b$	
	HP Ge	FIDLER
Parámetro a	0.029 ± 0.001	0.054 ± 0.002
Parámetro b	0.50 ± 0.02	0.51 ± 0.02
Número de observaciones	48	40
Coefficiente de Determinación, R²	0.951	0.931
RESIDUOS		
Valor medio	-3 %	-3 %
Desviación típica relativa	22 %	23 %
Intervalo	-40 % a +60 %	-30 % a +60 %

El estudio experimental de la influencia de variables como la composición química de las tierras o su densidad son difíciles de abordar, motivo por el que se decidió realizar un análisis de sensibilidad de la influencia de estas variables mediante el uso del programa de calibración matemática ISOCS [7] aplicado al detector SEGIS. Aunque dicha caracterización no está disponible para los FIDLER, otros autores [129] han demostrado que las conclusiones extraídas para el detector HP Ge son también extrapolables y válidas para el FIDLER. En la Figura 52 se muestran los resultados obtenidos en la modelización; a la izquierda se muestran las eficiencias para fotones de 59.5 keV calculadas con ISOCS para dos recipientes conteniendo tierras con densidades entre 0.5 y 2.5 g·cm⁻³ y dos composiciones químicas: Dirt1 (H: 2.2%, O: 57.5%, Al: 8.5%, Si: 26.2%, Fe: 5.6%) [124] y la resina empleada en la fabricación de las fuentes de calibración (C: 65.5%, H: 8%, O: 20.8%, N: 0.7%, Cl: 5%).

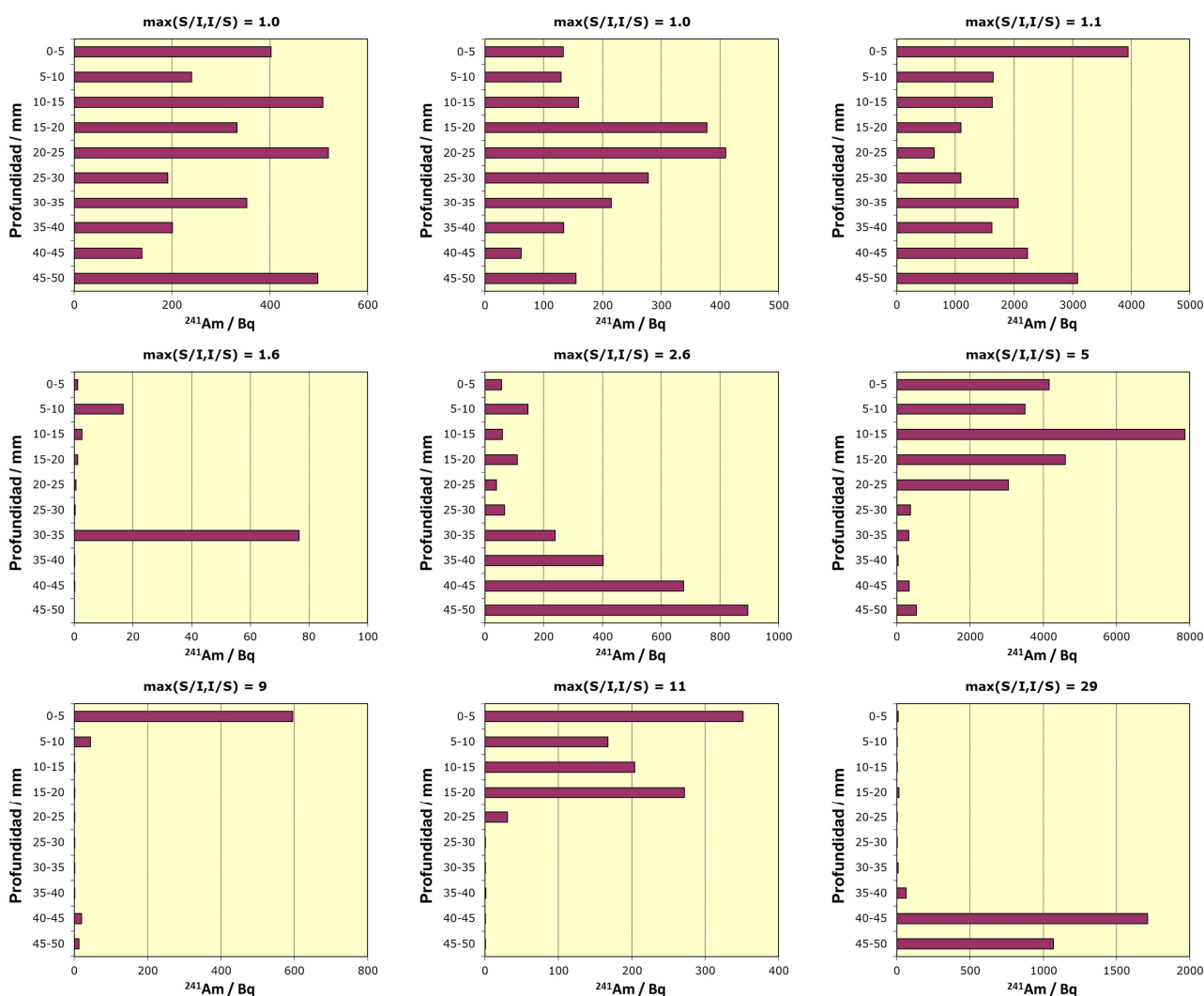


Figura 51: Distribución de la actividad con la profundidad en los recipiente de muestras inalteradas determinada con HP-Ge y su relación con el parámetro $\max(S/I, I/S)$.

Los resultados de las modelizaciones (Figura 52) revelan que la eficiencia para fotones de 59.5 keV puede variar con la densidad hasta un factor 2 para ambos materiales, y por tanto en este trabajo se ha definido un factor de corrección normalizado para la densidad de $1.5 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ que se muestra en la Figura 52 derecha. Dicho factor de corrección es prácticamente igual para las dos composiciones estudiadas en esta memoria, siendo su diferencia $< 10 \%$ en densidades bajas y $< 5 \%$ para densidades $> 0.8 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$. En consecuencia, en esta memoria se asume la hipótesis de que la influencia de la composición química del suelo es $< 5\%$ en la estimación de la actividad en las muestras inalteradas.

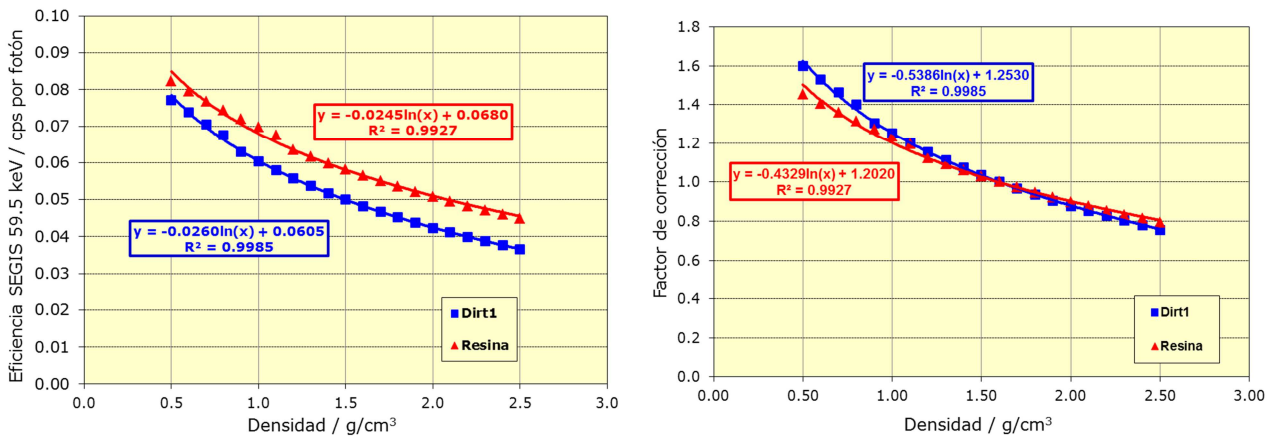


Figura 52: Efecto de la densidad en la eficiencia de SEGIS a 59.5 keV para los materiales Dirt1 y Resina y factor de corrección propuesto.

3.2.5 Calibración matemática en eficiencia de los HP-Ge

La calibración en eficiencia de los equipos SEGIS y FALCON se efectuaron con el programa ISOCS [7], proporcionando la estimación de la concentración de actividad de los radionucleidos detectados y su incertidumbre. Estos programas permiten calcular la función eficiencia de un detector para una gran variedad de muestras, configuraciones de medida e incluso distribuciones de actividad sin necesidad de emplear fuentes radiactivas. Para ello, el usuario necesita disponer de un detector previamente caracterizado para este programa e introducir los datos que permiten describir tanto la geometría y composición de la muestra, como la configuración de la medida.

La repetitividad y fiabilidad de los resultados del programa ISOCS fue demostrada por el fabricante mediante ejercicios de comprobación simulando el mismo término fuente con las diversas plantillas, obteniéndose curvas de eficiencia cuyas diferencias son < 0.5 % en el peor de los casos. Estos ensayos de validación incluían la comparación de los resultados de LABSOCS con los modelizados mediante una simulación Monte Carlo completa, o por la medida de patrones con fuentes radiactivas certificadas y preparadas con geometrías distintas. La incertidumbre total en términos relativos para la determinación de eficiencias en energías < 100 keV se midió que es del orden del 5 % en la mayoría de las geometrías, no llegando en ningún caso al 10 %.

El programa ISOCS proporciona al usuario una serie de plantillas con los parámetros y variables que permiten describir con gran detalle la muestra y configuración de la medida, incluyendo la presencia de colimadores, blindajes o absorbentes entre el detector y la muestra. En la Figura 53 se muestra un esquema de la plantilla utilizada para definir las medidas in situ con el detector SEGIS sin colimar en los terrenos de Palomares, que permitirá determinar la [^{241}Am] en las capas superficiales del suelo (a partir de este punto será denominado como "suelo superficial"), por lo que se consideró que el detector se situara perpendicular al terreno a una altura de 1.00 ± 0.05 m y el término fuente un cilindro de 100 cm de diámetro y 15 cm de espesor de tierra, homogéneamente contaminada y con composición química Dirt1 [124]. Idéntica geometría se seleccionó para la determinación de los radionucleidos naturales (^{40}K , series del U y del Th), modificando el tamaño del término fuente (20 m de diámetro y 50 cm de espesor) debido a que algunas de sus emisiones γ superan la energía de 2 MeV. A partir de los espectros in situ medidos, es

posible calcular la tasa de dosis equivalente ambiental asociada a las componentes terrestre y cósmica [130] de la radiación ambiental.

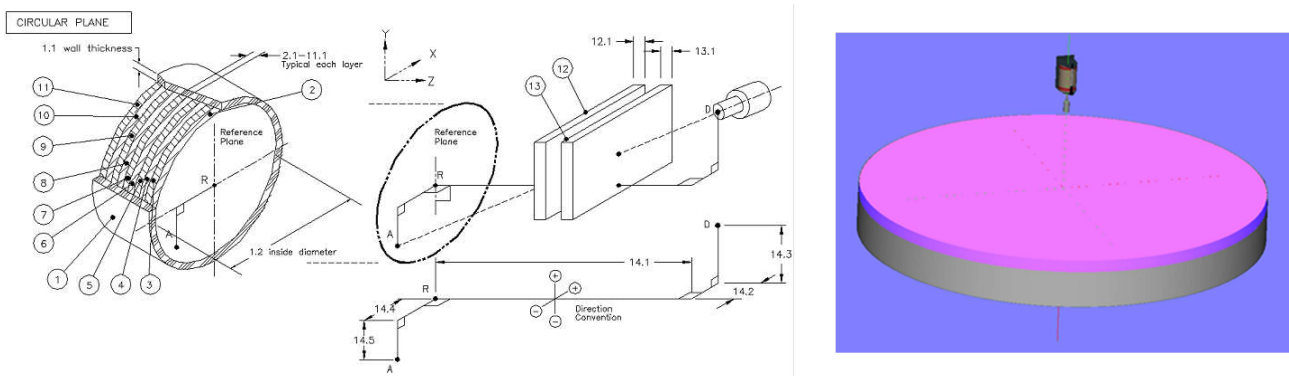


Figura 53: Plantilla de ISOCS para la definición de los parámetros de una medida in situ sin colimación y aplicación a las medidas sobre el terreno asumiendo que la contaminación radiactiva está en un cilindro de 100 m de diámetro y 15 cm de espesor (capa rosa).

Con este programa ISOCS también se pueden realizar medidas en el laboratorio, dado que dispone de plantillas para la medida de recipientes como cápsulas Petri, duquesas o Marinelli, etc. Además, este equipo versátil permite editar con todo detalle las dimensiones y materiales de dichos recipientes. En la Figura 54 se muestra el modelo desarrollado para el recipiente de acero inoxidable que se seleccionó y empleó para contener las muestras inalteradas (apartado 2.4.1).

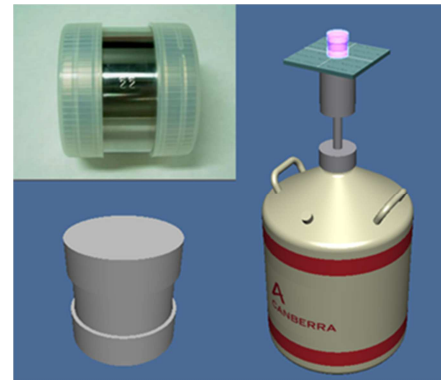


Figura 54: Modelo detallado obtenido con ISOCS del recipiente de acero inoxidable empleado como recipiente de las muestras inalteradas.

Los resultados obtenidos se recopilan en la Tabla XX, donde se comparan las eficiencias modelizadas con ISOCS con las medidas empleando fuentes radiactivas certificadas de la Tabla XVIII con distintas configuraciones de diámetro y espesor de la fuente, así como del espesor y densidad de la capa de tierra limpia interpuesta entre fuente y detector.

Las medidas realizadas permiten determinar que la eficiencia varía en casi dos órdenes de magnitud; pero aun así estos datos se pueden correlacionar con una relación lineal simple " $\epsilon(\text{experimental}) = a \cdot \epsilon(\text{ISOCS})$ ". En la Figura 55 se representan las medidas realizadas comparadas con las de la modelización, como se puede observar existe un buen ajuste lineal entre los datos, ajustándose dicho comportamiento a una recta con un valor de la pendiente $a = 1.02 \pm 0.02$ y un coeficiente de determinación $r^2 = 0.989$. En la misma Figura 55 se detalla el intervalo de bajas eficiencias.

Tabla XX: Comparación de las eficiencias a 59.5 keV experimentales y calculadas con ISOCS para diversas configuraciones de medida de muestras inalteradas de tierras.

Diámetro fuente, mm	Espesor fuente, mm	Espesor capa limpia, mm	Densidad capa limpia (g·cm ⁻³)	Eficiencia a 59.5 keV ISOCS	Eficiencia a 59.5 keV Experimental
<1	<1	0	No aplica	0.28 ± 0.01	0.26 ± 0.01
<1	<1	51	1.51	0.0048 ± 0.0002	0.0042 ± 0.0002
<1	<1	51	1.18	0.0076 ± 0.0004	0.0060 ± 0.0003
<1	<1	51	1.36	0.0059 ± 0.0003	0.0044 ± 0.0002
49	3	0	No aplica	0.18 ± 0.01	0.19 ± 0.01
49	3	48	1.51	0.0043 ± 0.0002	0.0040 ± 0.0002
49	3	48	1.18	0.0068 ± 0.0003	0.0062 ± 0.0003
49	3	48	1.36	0.0055 ± 0.0003	0.0040 ± 0.0002
49	6	0	No aplica	0.17 ± 0.01	0.18 ± 0.01
49	6	45	1.51	0.0049 ± 0.0002	0.0045 ± 0.0002
49	6	45	1.18	0.0075 ± 0.0004	0.0067 ± 0.0003
49	6	45	1.36	0.0060 ± 0.0003	0.0052 ± 0.0003
50	25	0	No aplica	0.096 ± 0.005	0.119 ± 0.006
50	25	26	1.51	0.0127 ± 0.0006	0.0132 ± 0.0007
50	25	26	1.18	0.0162 ± 0.0008	0.0152 ± 0.0008
50	25	26	1.36	0.0142 ± 0.0007	0.0135 ± 0.0007
50	50	0	No aplica	0.057 ± 0.003	0.072 ± 0.004

Estos resultados permiten demostrar la fiabilidad de las calibraciones matemáticas realizadas en esta memoria con el programa ISOCS, alcanzándose valores similares a los que el fabricante indica que se pueden obtener con este equipo.

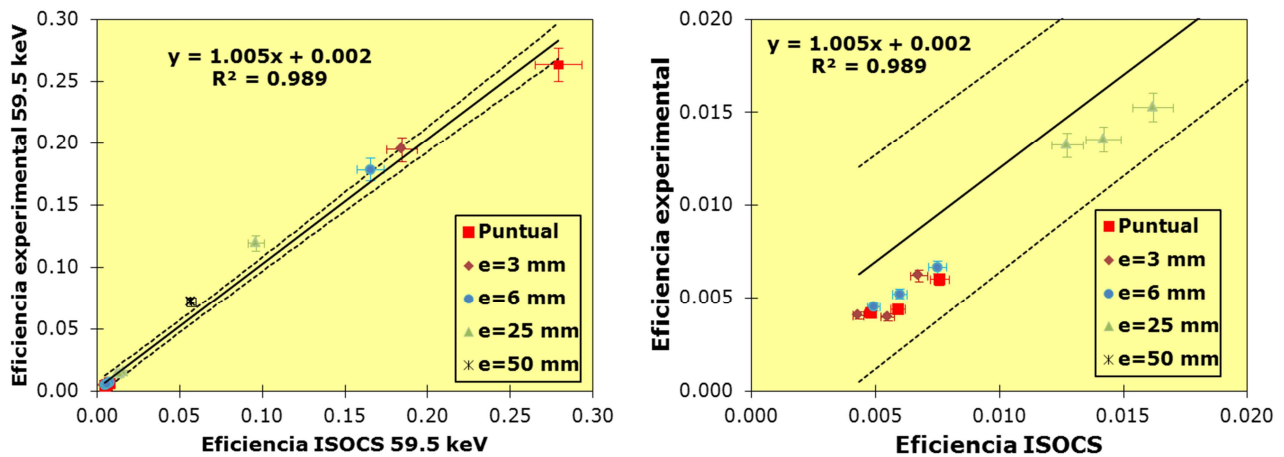


Figura 55: Comparación de las eficiencias calculadas con ISOCS con las obtenidas experimentalmente con fuentes certificadas en distintas geometrías y densidades en los recipientes de muestras inalteradas. Las líneas discontinuas muestran el intervalo de confianza del 95% para los modelos propuestos.

En el caso de la calibración matemática en eficiencias del HP-Ge Detective descrito en la sección 2.7 esta se efectuó con el programa ISOTOPIC-32 [131]. Este programa se desarrolló para la medida de grandes áreas contaminadas de suelos y superficies y al igual que el anterior está basado en modelos matemáticos [132] [133], que utilizan modelos de geometría y atenuación para extender la eficiencia de calibración experimental obtenida con fuentes puntuales a la actual geometría del contenedor (Figura 56).

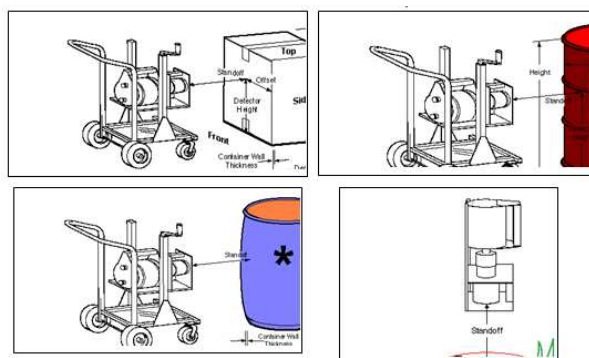


Figura 56: Geometrías para la calibración matemática en eficiencia ofrecidas por el programa ISOTOPIC-32.

A diferencia de ISOCS, el método HP-Ge Detective se puede aplicar a cualquier detector sin ser necesaria su caracterización previa, pero sí exige la realización precisa de una serie de medidas previas con fuentes radiactivas certificadas en varias geometrías sencillas diferentes. Una vez se realizan el programa proporciona la calibración en eficiencia con varias configuraciones sencillas e incluye los efectos debidos al detector, al material de construcción del detector, así como los procesos de absorción en el material de la fuente por su composición o densidad.

3.2.6 Correlación entre los resultados de las medidas experimentales

El siguiente paso a realizar en esta memoria de investigación es comparar los valores medidos en 659 muestras inalteradas que habían sido previamente medidas en Palomares con el cambiador FIDLER con los obtenidos en una segunda medida en el CIEMAT con detectores HP Ge en recintos blindados que se describen en el apartado 2.5. El tiempo de recuento por cada extremo fue suficiente para asegurar una incertidumbre de recuento de menos del 5 %, lo que supuso tiempos entre 1 y 10 min. Con los resultados de las 482 muestras que fueron superiores a la CAMD con el cambiador FIDLER, se estudió la correlación con los datos obtenidos con los HP-Ge [129] que se resume en la Figura 57, donde, para cada zona, se muestra en la primera columna la distribución de la densidad aparente de las muestras inalteradas, en la columna central los histogramas de los valores de $\max(S/I, I/S)$ que se relacionan con la distribución de la actividad dentro de la muestra, y en la columna de la derecha los análisis de regresión lineal $y = a \cdot x + b$. Para cada zona de estudio se puntualiza lo siguiente:

- Zona 2: 239 muestras estudiadas con densidad aparente media de $1.34 \pm 0.22 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, variando desde 0.6 hasta $2.1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$. La ^{241}Am varió entre $0.5 - 120 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$, siendo la distribución de actividad en la muestra cuasi-homogénea en el 78 % de los casos, el 16 % fueron heterogéneas y el 6 % fueron muy heterogéneas. La correlación entre ambos sistemas es excelente (coeficiente de determinación $R^2 > 0.95$) y la pendiente del modelo es $a = 0.92 \pm 0.02$ ($k = 2$) y la constante se puede considerar nula pues $b = 0.1 \pm 0.2$ ($k = 2$) $\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$.

- Zona 3: 99 muestras estudiadas con densidad aparente media de $1.41 \pm 0.30 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, variando desde $0.5 - 2.2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$. La $[^{241}\text{Am}]$ varió en el intervalo de $0.5 - 30 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ y la distribución de actividad en la muestra fue cuasi-homogénea en el 97 % de los casos, el 2 % fueron heterogéneas y el 1 % fueron muy heterogéneas. La correlación entre ambos sistemas es buena (coeficiente de determinación $R^2 > 0.85$) y la pendiente del modelo es $a = 0.93 \pm 0.02$ ($k = 2$) y la constante se puede considerar nula pues $b = 0.2 \pm 0.3$ ($k = 2$) $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.
- Zona 6: 144 muestras estudiadas con una densidad aparente media de $1.42 \pm 0.23 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, variando entre $0.6 - 2.1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$. La $[^{241}\text{Am}]$ varió entre $0.5 - 25 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ y la distribución de actividad en la muestra fue cuasi-homogénea en el 44 % de los casos, el 43 % fueron heterogéneas y el 13 % fueron muy heterogéneas. La correlación entre ambos sistemas es aceptable (coeficiente de determinación $R^2 > 0.75$) y la pendiente del modelo es $a = 0.81 \pm 0.06$ ($k = 2$) y la constante no es nula $b = 1.0 \pm 0.2$ ($k = 2$) $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.

En resumen, los resultados experimentales presentan una buena correlación entre las medidas de muestras inalteradas con FIDLER y HP-Ge en las muestras de las zonas 2 y 3 para amplios intervalos de densidad aparente (entre $0.5 - 2.2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$), la $[^{241}\text{Am}]$ (en el intervalo entre $0.5 - 120 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$) y diversos patrones de la distribución de la actividad en las muestras.

Los resultados obtenidos son peores para las muestras de la zona 6, donde, aunque se constató una densidad aparente similar a las de las zonas 2 y 3, se observó una notable fracción de distribuciones heterogéneas de la actividad con valores de $\max(S/I, I/S) > 10$, lo que tiene una influencia importante en la estimación de la eficiencia a aplicar. Este hecho unido a las diferencias en la composición química y al estado de agregación de las tierras (recuérdese que son pizarras y micaesquistos, apartado 1.3.1) de la zona 6 pueden explicar esta diferencia.

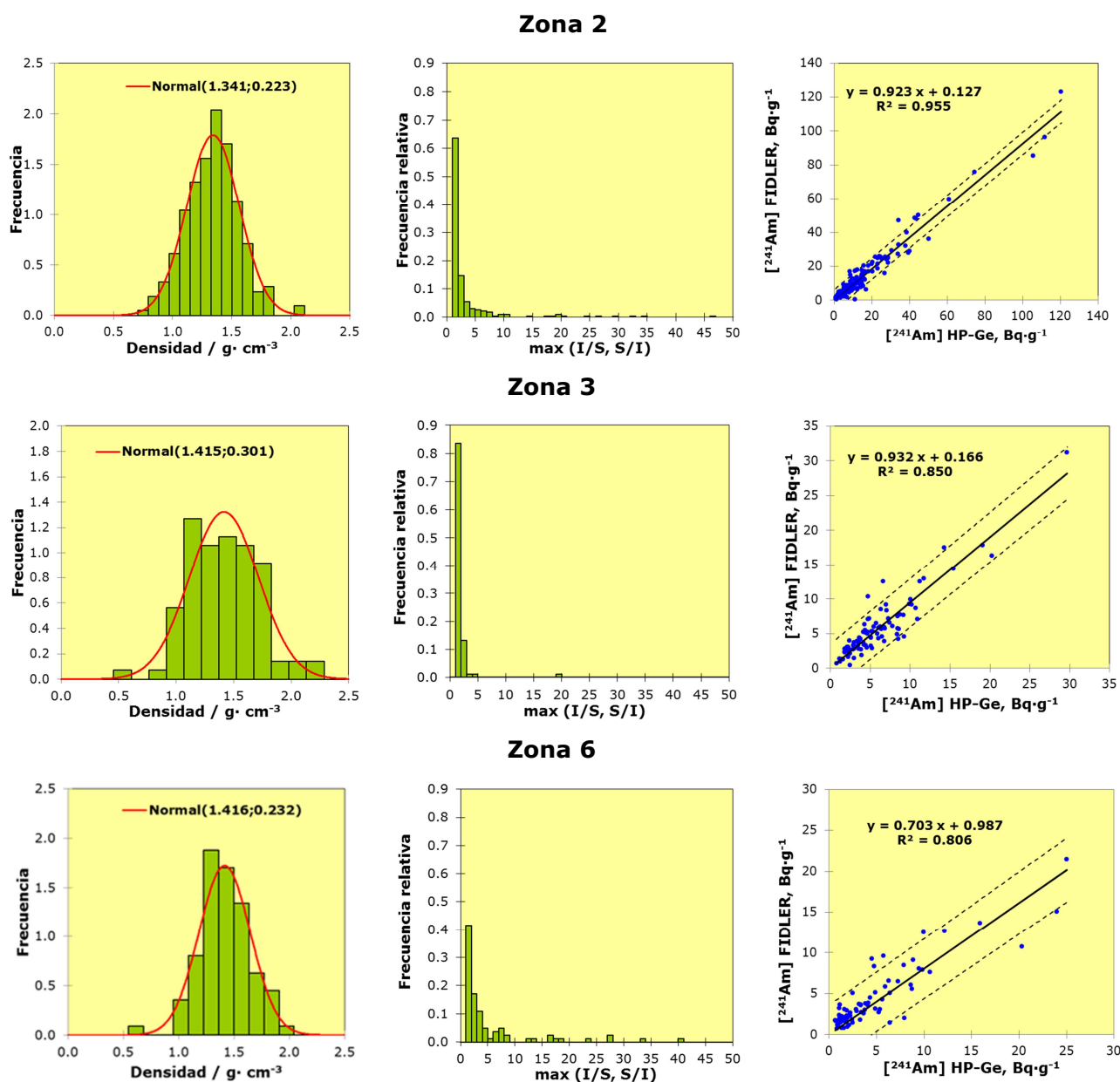


Figura 57: Relación entre los resultados de los análisis de muestras inalteradas de tierras efectuados con el cambiador FIDLER y los detectores HP-Ge: valores de la densidad aparente de las muestras inalteradas y su aproximación a una distribución normal (columna izquierda), histograma de los valores $\max(S/I, I/S)$ (columna central), y análisis de regresión lineal $y = a \cdot x + b$ (columna derecha) donde las líneas a trazos indican el intervalo de confianza del 95 % para las observaciones.

3.2.7 Calibración del Mini-FIDLER

El equipo Mini-FIDLER se ha calibrado con el mismo método semiempírico descrito para el FIDLER en los apartados anteriores y que es el producto de la eficiencia intrínseca del detector (ϵ_1) por la eficiencia del término fuente (ϵ_A). En este caso el testigo del sondeo se ha modelizado como un cilindro hueco de 10 cm de longitud y 50 mm de diámetro interior y 3 mm de espesor de PVC (H: 8.50 %, C: 37.0 %, Cl: 54.5 %) de densidad $1.4 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, cuyo interior se consideraba relleno de tierra homogéneamente contaminada

con $[^{241}\text{Am}] = 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, composición Dirt1 [124] y densidad $1.6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$. La Tabla XXI muestra los resultados obtenidos para la distancia de 1 cm entre el detector y el testigo [103].

Tabla XXI Resultados de la calibración instrumental de un Mini-FIDLER y cálculo de la eficiencia total para el modelo del testigo de los sondeos practicados en los suelos de Palomares. Las incertidumbres se expresan con un intervalo de confianza del 95 % ($k = 2$)

Distancia testigo-detector	$\epsilon_I /$ cuentas por fotón	$\epsilon_A /$ Fotones·s ⁻¹ por Bq·g ⁻¹	$\epsilon_I \cdot \epsilon_A /$ cps por Bq·g ⁻¹
1 cm	0.32 ± 0.03	2.53 ± 0.05	1.2 ± 0.1

Cada testigo fue inspeccionado con el equipo Mini-FIDLER como se describe en el apartado 2.4.3, obteniéndose más de 7 500 registros que, tras substraer el fondo de cada sondeo (que varió entre 5 y 9 cps), se utilizaron para decidir las muestras a extraer por corte del testigo con la misma geometría de las muestras inalteradas descrita en el apartado 2.4, con la salvedad de que el recipiente es en esta ocasión de PVC.

En cada sondeo se obtuvieron al menos dos muestras: una entre 20 y 50 cm de profundidad y otra en la profundidad máxima del sondeo, que varió entre 60 cm y 6 m. Además, se extrajeron muestras en los puntos de los sondeos cuyo perfil radiológico indicaba la posible presencia de contaminación por ^{241}Am . En total se extrajeron 734 muestras que fueron transportadas al CIEMAT para ser sometidas a los análisis por espectrometría gamma con detectores de HP Ge, obteniéndose más de 1 400 espectros.

Para comprobar la calibración semiempírica del Mini-FIDLER, se compararon los registros obtenidos con el mismo por medida directa sobre el testigo con los resultados de las muestras correspondientes extraídas por corte y medidas posteriormente en el CIEMAT con los HP Ge. En la Figura 58 se observa una buena correlación entre los resultados, con una pendiente de 0.70 ± 0.02 ($k = 2$) y una constante de 0.3 ± 0.3 ($k = 1$) $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ que en la práctica se puede considerar nula. El valor de la pendiente indica una tendencia a la sobrestimación del 30 % en el Mini-FIDLER, que se explica porque en la medida directa sobre el testigo puede estar afectada por los tramos vecinos que obviamente no existen tras el corte de la muestra. El valor nulo de la pendiente confirma la necesidad de substraer el fondo del recuento del Mini-FIDLER. Queda así demostrada la

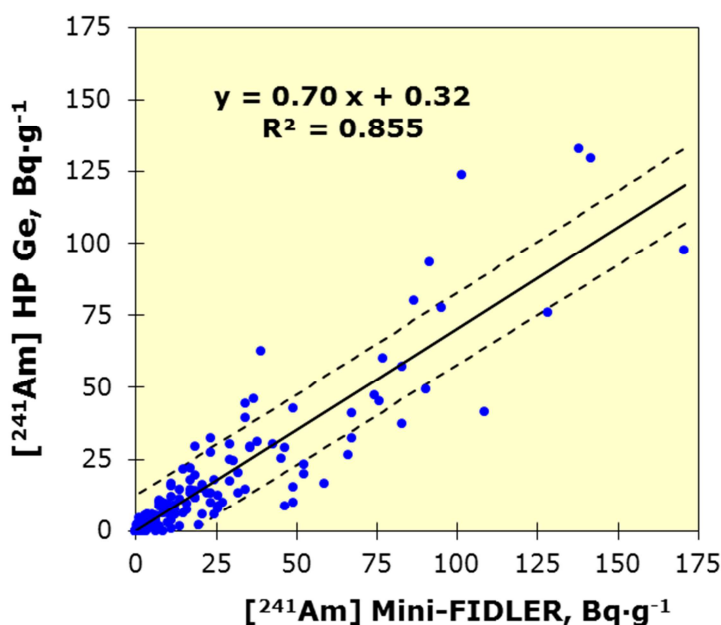


Figura 58: Comparación de las medidas directas sobre el sondeo con Mini-FIDLER con las medidas de las muestras obtenidas por corte del testigo y medidas con HP Ge.

trazabilidad entre las medidas directas del Mini-FIDLER sobre los testigos de los sondeos con las medidas efectuadas con HP Ge sobre las muestras extraídas de los mismos.

3.2.8 Calibración de la eficiencia del sistema Tolva-revólver

Cuando se pretende realizar la calibración de este equipo es necesario considerar el volumen del recipiente de medida de la Tolva-revólver y la notable autoabsorción de los fotones de 59.5 keV emitidos por el ^{241}Am ; lo que exige emplear 'fuentes de calibración' realistas cuya fabricación y certificación resulta prácticamente imposible. Para solventar este problema y poder calibrar el equipo, en este trabajo de investigación, se optó por fabricar muestras de unos 12 dm^3 de varios puntos de las zonas impactadas, donde la contaminación existente ya estaba medida y era conocida por las caracterizaciones dinámicas y estáticas. Las muestras seleccionadas para la calibración tenían una $[\text{}^{241}\text{Am}] < 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. Dichas muestras fueron tamizadas sobre el terreno con cedazos de 1 mm de luz y se eliminaron las raíces y otros restos vegetales.

Una vez limpiados de restos vegetales y comprobado que los recipientes no presentaban contaminación externa, fueron trasladados a la PPTT, donde la tierra fue vaciada en un cilindro idéntico al empleado en la Tolva-Revólver, que se selló para evitar el vertido de su contenido (ver Figura 59). Dicho cilindro se midió con los equipos Detective y FALCON en una geometría que permitía estimar la $[\text{}^{241}\text{Am}]$ de todo el recipiente (Figura 60); la selección de estos equipos se basa en que ambos admiten los métodos de calibración matemática en eficiencia descritos en el apartado 3.2.5. Para la realización de la calibración en eficiencia se seleccionaron 6 muestras, cuya procedencia geográfica y $[\text{}^{241}\text{Am}]$ se muestra en la Tabla XXII.



Figura 59: Geometría para la determinación de la eficiencia de la Tolva-Revólver.



Figura 60: Medida simultánea con los sistemas HP-Ge para la calibración en eficiencia de la Tolva-Revólver.

Es importante remarcar que el patrón más activo (nº 2) se situó en la posición de medida de la Tolva-Revólver y se efectuaron medidas simultáneas con los 4 FIDLER. El resultado final de la medida realizada fue que la eficiencia en la determinación de $[\text{}^{241}\text{Am}]$ es de:

$$(3.42 \pm 0.14) \cdot 10^{-4} \text{ cps por Bq}\cdot\text{g}^{-1}$$

Tabla XXII: Origen geográfico y $[^{241}\text{Am}]$ de los patrones de referencia de 12 dm³ utilizados en la calibración en eficiencia de los FIDLER de la Tolva-Revólver.

Muestra nº	Origen	X_UTM / m	Y_UTM / m	Altitud / m	$[^{241}\text{Am}241]$ / Bq·g ⁻¹	U($[^{241}\text{Am}]$) k=2 / Bq·g ⁻¹
1	Zona 2 Impacto	605265.5	4122591.9	42.0	0.33	0.08
2	Zona 2 Sur	605377.2	4122609.0	48.7	1.8	0.1
3	Zona 2 Sur	605372.7	4122729.5	46.7	1.7	0.2
4	Zona 2 Sur	605235.4	4122388.0	29.4	0.26	0.03
5	Zona 2 Norte	605462.2	4123049.5	53.2	< 0.1	no aplica
6	Zona 3	607079.0	4123052.2	24.2	0.26	0.06

3.3 Caracterización radiológica del suelo superficial (0-15 cm)

Teniendo en cuenta los procedimientos de caracterización radiológica descritos en el apartado 2, se procedió a la caracterización del terreno impactado. Al objeto de facilitar una comprensión rápida de los resultados que se recopilan en esta memoria y dado el número elevado de resultados obtenidos, se optó por la necesidad de mostrar asociada a su localización geográfica, un código de colores que permita una rápida interpretación visual del problema. Tomando como punto de partida los criterios radiológicos establecidos por el CSN, es decir, las dosis residuales anuales derivadas de la contaminación existente y su comparación con los límites de dosis actualmente establecidos en España para miembros del público y trabajadores expuestos a las radiaciones ionizantes [72], los resultados presentados en esta memoria utilizan el código siguiente:

- **GRIS CLARO, $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$:** Sin impacto radiológico. La dosis residual es inferior a 1 mSv/a y por tanto no supera el límite de dosis al público.
- **VERDE, $[^{241}\text{Am}] = 1 - 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$:** Restricción parcial de uso. La dosis residual está entre 1 y 5 mSv/a y supera el límite de dosis al público.
- **AMARILLO, $[^{241}\text{Am}] = 5 - 20 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$:** Restricción total de uso. La dosis residual está entre 5 y 20 mSv/a, supera el límite de dosis al público e incluso el valor recomendado para los trabajadores expuestos de Categoría A.
- **NARANJA, $[^{241}\text{Am}] = 20 - 50 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$:** Restricción total de uso. La dosis residual está entre 20 y 50 mSv/a, supera el límite de dosis al público e incluso el límite de dosis para los trabajadores expuestos promediado en 5 años oficiales consecutivos.
- **ROJO, $[^{241}\text{Am}] > 50 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$:** Restricción total de uso. La dosis residual es superior a 50 mSv/a, supera el límite de dosis al público e incluso el límite de dosis para los trabajadores expuestos en un solo año oficial.

Las escalas de los mapas, utilizados en esta memoria de investigación, se muestran en términos de las coordenadas UTM y por tanto se expresan en m. Para la visualización de los mapas y la realización de los cálculos geoestadísticos se ha empleado el programa Surfer [134].

La estimación del área proyectada en un plano de los terrenos afectados con determinados niveles de contaminación se ha calculado mediante el método determinístico de interpolación poligonal o del vecino natural [135], que consiste en atribuir el valor observado en un punto a la superficie del polígono que le rodea cuyos lados están a una cierta distancia de las observaciones vecinas. En consecuencia, los valores interpolados no pueden rebasar los valores extremos de las observaciones ni el ámbito espacial de las mismas, lo que le diferencia de otros métodos geoestadísticos como: las interpolaciones polinómicas, la interpolación ponderada con el inverso de la distancia o el kriging [136].

La precisión de la interpolación poligonal depende del espaciado medio entre los datos experimentales tal y como se muestra en la Figura 61 con los datos obtenidos en las distintas campañas de medida en los alrededores del punto de impacto nº 2. Al disminuir el espaciado entre las medidas aumenta el detalle con el que se determinan las áreas de las zonas afectadas con los distintos niveles de ^{241}Am y se suavizan espacialmente las variaciones bruscas de la variable geolocalizada entre los polígonos vecinos. Y al contrario, al aumentar el espaciado disminuye la probabilidad de detectar puntos localizados en superficies pequeñas, lo que produce zonas suavizadas tanto en área como en ^{241}Am .

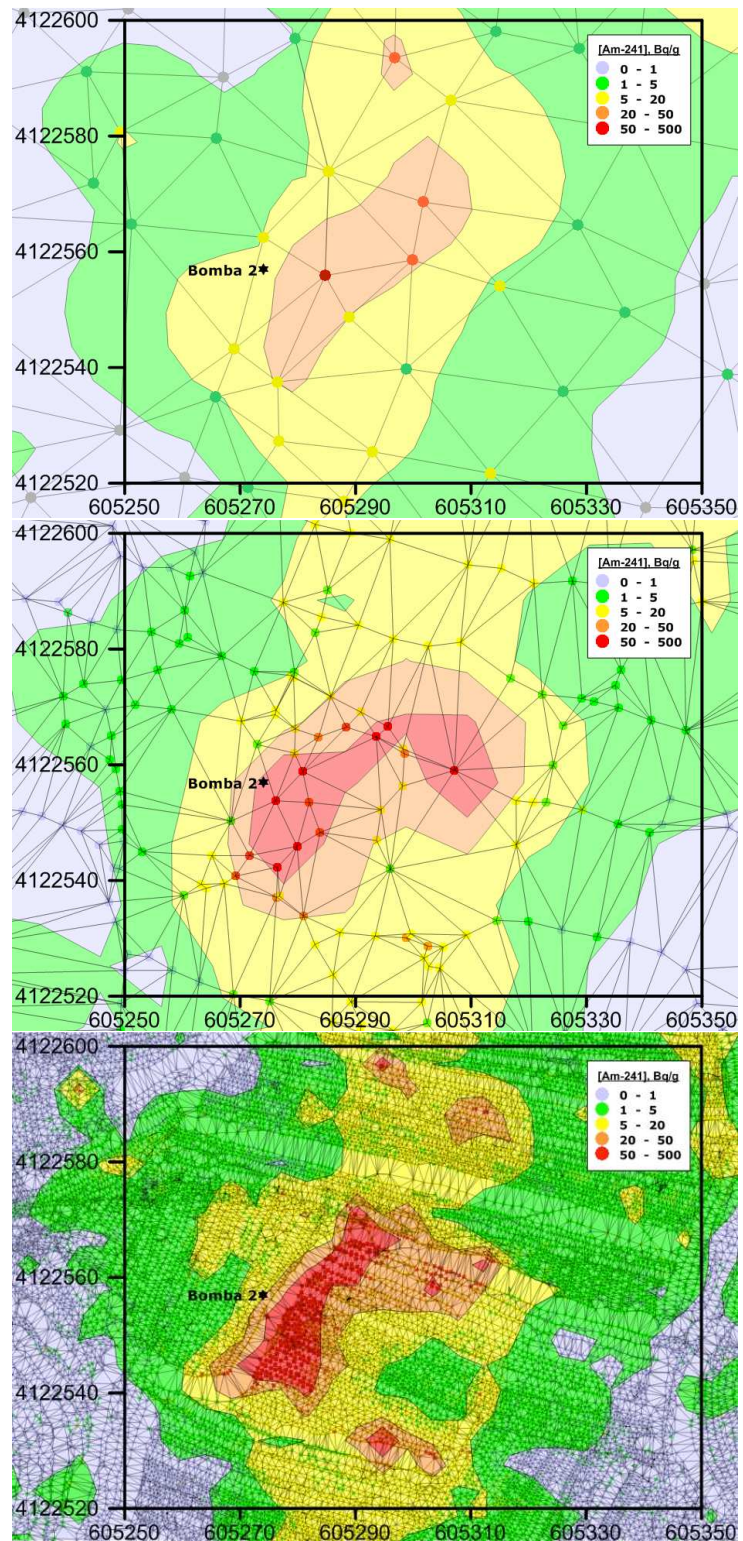


Figura 61: Evaluación del método de interpolación poligonal empleado para representar las áreas afectadas en la zona nº 2. Espaciados: Superior, medidas estáticas (espaciado medio 14 m). Medio, medidas dinámicas extensivas (3 m). Inferior, medidas dinámicas intensivas (0.4 m).

Es importante remarcar que debido a que la posición geográfica de cada medida se determinó con una incertidumbre del orden de 0.01 cm, la incertidumbre relativa de las áreas calculadas con el 95 % de nivel de confianza es proporcional al espaciado y se estima entre 1 - 10 % para espaciados entre 0.4 - 15 m, respectivamente.

Debe hacerse notar también que la posición de los valores máximos de [^{241}Am] determinados por distintas metodologías puede no coincidir debido a su distinto espaciado. De hecho en la Figura 61 se observa que el número de datos medidos y registrados en el intervalo superior varía desde casi un centenar en las medidas intensivas, una decena en las extensivas e incluso ninguno en las estáticas. Ello produce un efecto de suavizado en las concentraciones y diferencias notables en las áreas calculadas.

3.3.1 Caracterización extensiva del suelo superficial

Para la realización de esta tarea, en primer lugar se procedió al reconocimiento a pie de unos 430 km sobre una malla de 25 x 25 m en \approx 660 ha de las pedanías de Palomares y Villaricos, incluyendo las 230 ha que fueron ya definidas como la "Línea Cero de contaminación inicial" por los EEUU en 1966 (Figura 11).

Las medidas radiológicas se efectuaron desde noviembre de 2006 a febrero de 2007 [137], registrándose más de 63 000 medidas superficiales de [^{241}Am] en suelo obtenidas con el sistema DINARAD, cuya distribución de frecuencias se muestra en la Figura 62, donde se constató que únicamente se determinaron [^{241}Am] > 1 Bq·g $^{-1}$ en el 3 % de las medidas. El valor máximo medido durante la caracterización extensiva fue 147 ± 60 Bq·g $^{-1}$, punto localizado en las cercanías del punto de impacto de la bomba nº 2.

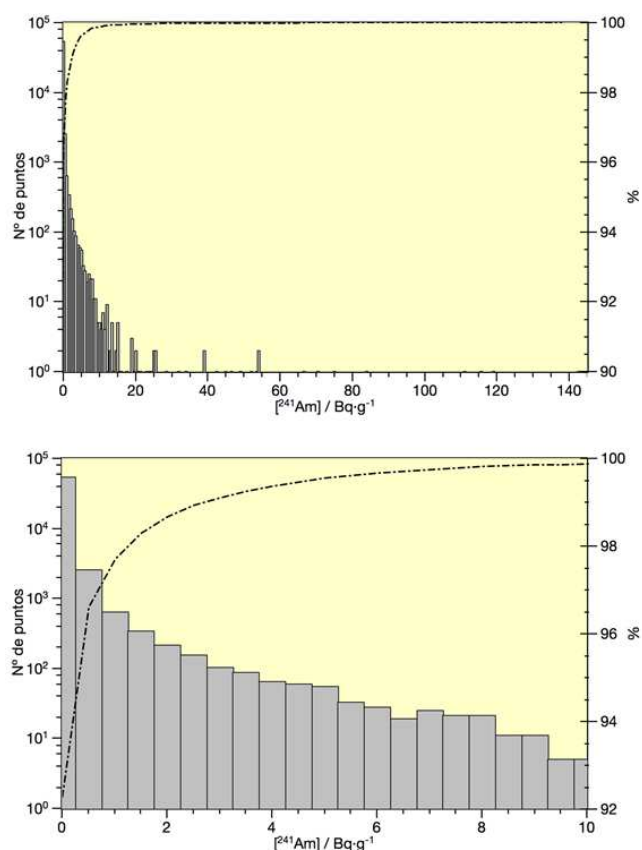


Figura 62: Distribución de frecuencias de las medidas de [^{241}Am] obtenidas en la caracterización detallada de Palomares.

La Figura 63 superior muestra un mapa con los resultados obtenidos utilizando el código de colores sobre una extensión de 5.5 x 3 km (1 550 ha) centrada en Palomares y que se extiende por el O hasta Vera y por el E hasta Villaricos y la Sierra Almagrera. Además, en él están señaladas las localizaciones claves relacionadas con el área de estudio, es decir: el punto de colisión de las aeronaves, el punto de separación de las bombas de las aeronaves, los puntos de impacto de las bombas 1, 2 y 3, así como los lugares donde se encontraron otras piezas significativas. A partir de estos resultados y mediante el método

de interpolación del vecino natural, se realizó el mapa de áreas, que se muestra en la Figura 63 inferior. De este mapa son de destacar las informaciones que a continuación se enumeran:

- Área total caracterizada de manera extensiva: 619 ha
- Áreas sin restricciones de uso: 601 ha (~97.2 % del área total)
- Áreas con restricción de uso parcial (es decir, $1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1} > [^{241}\text{Am}] > 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$): 14.7 ha (~ 2.4 % del área total)
- Áreas con restricción de uso total (es decir, $[^{241}\text{Am}] > 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$): 2.65 ha (~ 0.4 % del área total)

Como se puede observar en la Figura 64, aquellas parcelas que dada su caracterización se deben clasificar como "con restricción de uso parcial ($1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1} > [^{241}\text{Am}] > 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$)" se encuentran localizadas en el entorno de los puntos de impacto de las bombas 2 y 3, así como en una zona de la Sierra Almagrera, cercana al punto donde se encontró la placa trasera de la bomba nº 4 que separaba los paracaídas del dispositivo termonuclear:

- La zona 2, es un valle al O de Palomares constituido por terrazas planas destinadas a usos agrícolas y separadas entre sí por caballones de entre 1 - 2 m de altura. El valle está flanqueado por colinas de entre 20 - 70 m de altura cubiertas de vegetación autóctona y cuyo suelo puede considerarse de manera genérica como inalterado, salvo en una parcela donde la colina fue desmochada para extender la superficie plana cultivable. En el extremo S, el valle se estrecha hasta confluir en el arroyo del Jatico. En el N se encuentra una colina y varias terrazas separadas del resto de la zona por 2 balsas de riego construidas en los años 1980. Dicha colina se puede considerar como inalterada pero las terrazas se han dedicado a la agricultura y al cobijo de ganado ovino.
- La zona 3 está muy próxima al casco urbano pero siempre se ha destinado a usos agropecuarios. Está constituida por varias terrazas planas de explotación agrícola que están separadas por caballones de 1 m de altura. Existen algunos caballones reforzados con un murete realizado durante las acciones de remedio de 1966. En los últimos años se añadió material de relleno sobre dicho muro y se edificó una vivienda sobre el mismo.
- La zona 6 está constituida por una serie de colinas, valles y barrancos de la Sierra Almagrera sin ningún uso más allá del pastoreo de animales y la caza de temporada. En consecuencia, el suelo puede considerarse como inalterado por la acción humana desde el momento del accidente.

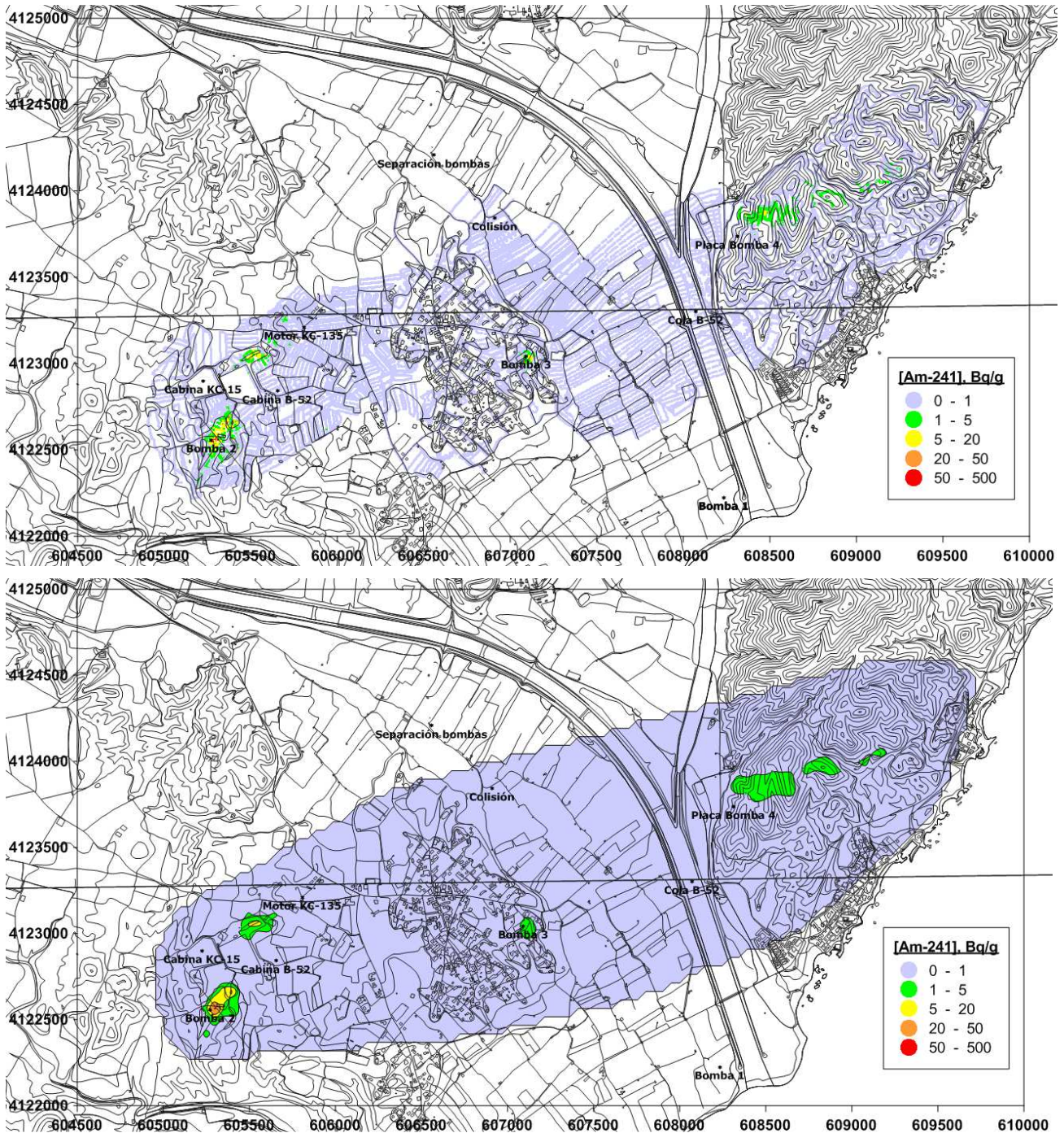
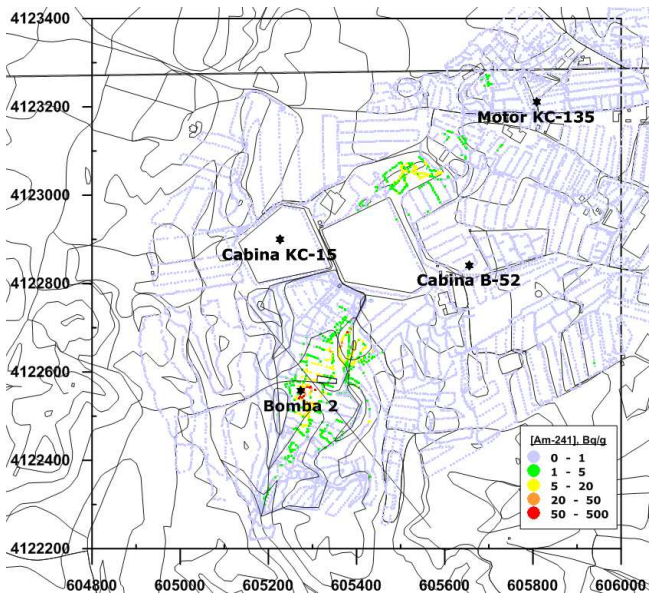
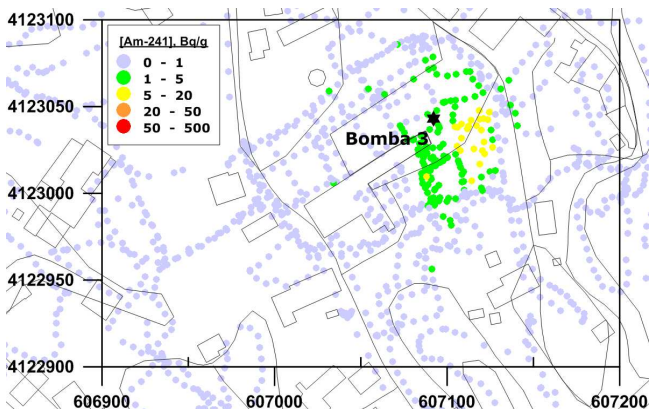


Figura 63. Superior: Caracterización de $[^{241}\text{Am}]$ en el suelo superficial de Palomares (datos campaña noviembre de 2006 hasta febrero de 2007). Inferior: Mapa de áreas proyectadas en un plano obtenido mediante la interpolación del vecino natural.

Zona 2



Zona 3



Zona 6

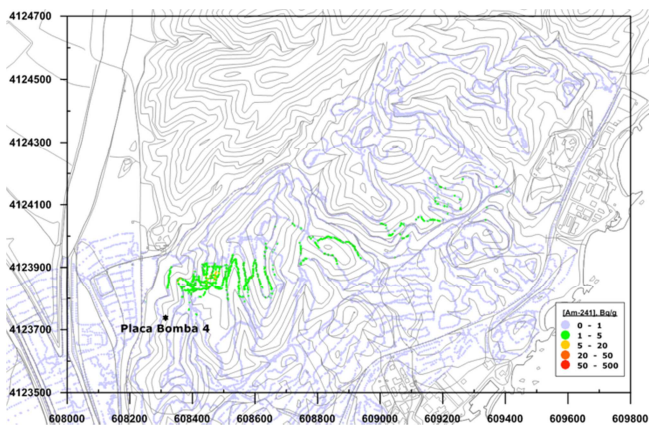


Figura 64: Detalle de la caracterización radiológica extensiva e imágenes aéreas obtenidas en 2007 en torno a los puntos de impacto nº 2 (zona 2) y 3 (zona 3) y la Sierra Almagrera (zona 6).

3.3.2 Caracterización intensiva del suelo superficial

Los estudios de caracterización intensiva superficial del terreno se efectuaron mediante recorrido a pie de las 40 ha de las Zonas 2, 2-bis, 3 y 6 identificadas como afectadas en la caracterización extensiva desde mayo de 2007 hasta enero de 2008 [138]. Dicha caracterización se basó en medidas realizadas en el terreno recorriendo más de 500 km en una malla de $1 \times 1 \text{ m}^2$ (excepto impedimento de las dificultades orográficas). En total la campaña contempló la realización de medidas de las cuales fueron registradas más de 329 000 medidas con el sistema DINARAD, utilizando el procedimiento y metodología descritos en el apartado 2.3.

En el caso de las terrazas planas de las zonas 2 y 3, estas fueron desbrozadas previamente para facilitar la realización de las medidas con el carro ya que así se aseguraba que la distancia entre el detector y el suelo fuera de 5 cm. En la Zona 6 y en las colinas que flanquean el valle expropiado en la zona 2, se efectuaron los recorridos a pie que fueron accesibles debido a las dificultades que presenta su orografía.

En la Figura 65 y la Tabla XXIII se presenta la estadística descriptiva de las medidas dinámicas extensivas e intensivas (zonas 2, 3 y 6). La resolución espacial de las mismas varía desde 0.3 a $2.5 \text{ m}^2/\text{medida}$ en las 22 ha de la campaña intensiva frente a los $105 \text{ m}^2/\text{medida}$ en las 660 ha de la campaña extensiva.

El análisis estadístico de los datos obtenidos en cada una de las zonas y su análisis comparativo (ver Figura 65) revela la existencia de diferencias notables entre los valores medios y las medianas de cada uno de los grupos de muestra, hecho que condiciona la elección de los indicadores de la tendencia central y de la dispersión de las distribuciones. En todas ellas se observa un gran número de valores elevados atípicos que superan en 1.5 veces el rango intercuartil. Aproximadamente, entre el 20 - 25 % de las medidas de la campaña intensiva presentan valores superiores al criterio de restricción parcial de uso y un 9 % fueron superiores al criterio de restricción total de uso, salvo en la zona 6 que fue del 1 %. En la zona 2 aproximadamente el 4 % de las medidas están por encima de los $10 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. En las otras zonas se encontraron valores máximos entre 5 y 10 veces menores y también menores fracciones de valores elevados de contaminación.

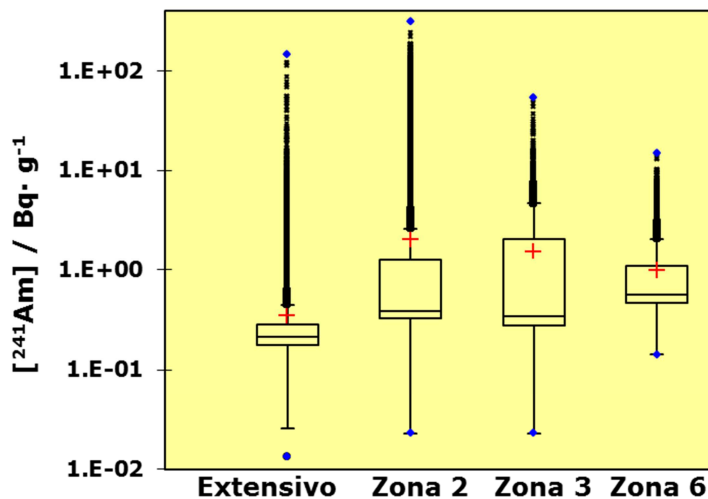


Figura 65: Diagramas de caja de los resultados de las medidas dinámicas de $[^{241}\text{Am}]$ en Palomares.

La Figura 66 muestra los mapas de cada una de las zonas con los resultados obtenidos en la caracterización intensiva y su análisis mediante los mapas de áreas obtenidos con la interpolación del vecino natural que permite estimar la superficie de los terrenos afectados

con distintas [^{241}Am]. Un resumen de estos datos de la caracterización se presentan en la Tabla XXIV, donde se distingue entre las partes N y S de la Zona 2 separadas por las balsas de regadío. El área de los terrenos que superan el criterio de restricción parcial de uso ($1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1} < [^{241}\text{Am}] < 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$) es de 11.5 ha, localizándose principalmente en la Zona 6 (7.6 ha) y la Zona 2 (3.7 ha). El área de los terrenos contaminados con niveles superiores al criterio de restricción total de uso ($[^{241}\text{Am}] > 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$) es de 4.5 ha, localizándose 3.9 ha en la Zona 2 y de estas 1.6 ha presentan $[^{241}\text{Am}] > 20 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. El área de los terrenos contaminados en la zona 3 es 0.6 ha, con valores de [^{241}Am] más moderados. En contraste, la Zona 6 apenas presenta áreas contaminadas superiores a la restricción total de uso (300 m²).

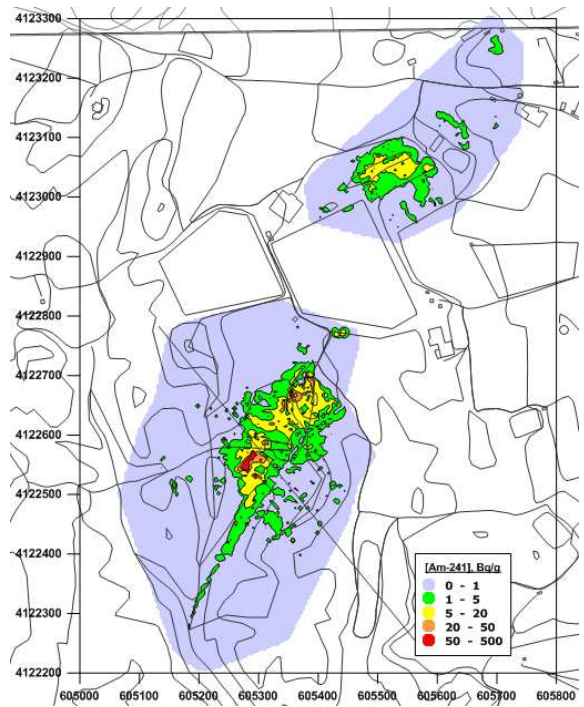
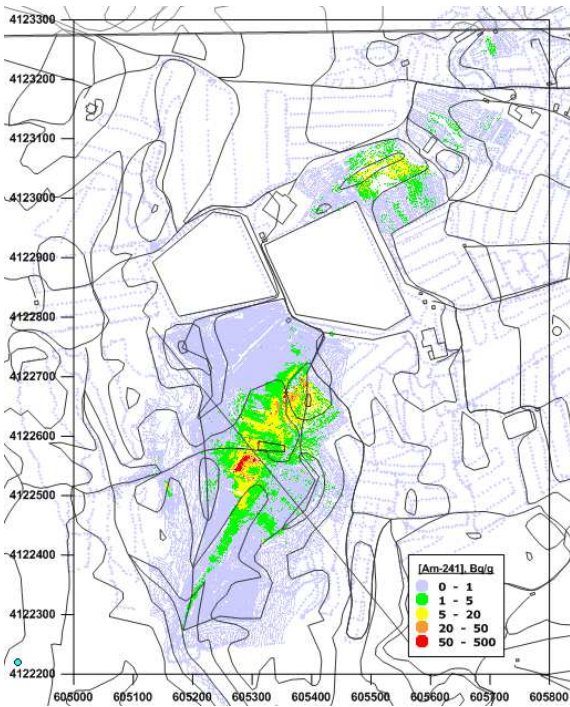
Tabla XXIII: Estadística descriptiva de los resultados de las medidas dinámicas de la [^{241}Am] en el suelo superficial de Palomares.

Estadístico		Extensivo	Intensivo Zona 2	Intensivo Zona 3	Intensivo Zona 6
Nº de observaciones		63 095	203 065	23 703	34 814
Superficie estudiada, ha		660	11.3	0.7	10.1
Resolución, m ² /medida		105	0.5	0.3	2.5
[^{241}Am] / Bq·g ⁻¹	Mínimo	0.01	0.02	0.02	0.14
	Máximo	147	312	53.8	14.8
	1º Cuartil (25%)	0.18	0.32	0.28	0.46
	Mediana (50%)	0.21	0.38	0.34	0.56
	3º Cuartil (75%)	0.21	0.38	0.34	0.56
	Media	0.35	2.06	1.54	0.98
	Desviación típica	1.54	6.47	2.28	0.95
	Límite inferior de la media (95%)	0.34	2.03	1.51	0.97
	Límite superior de la media (95%)	0.36	2.08	1.57	0.99

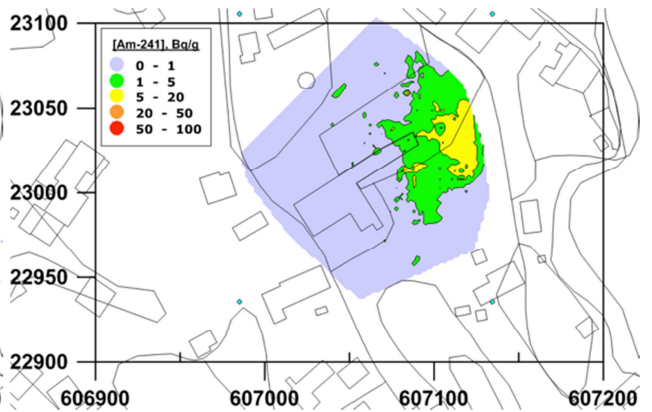
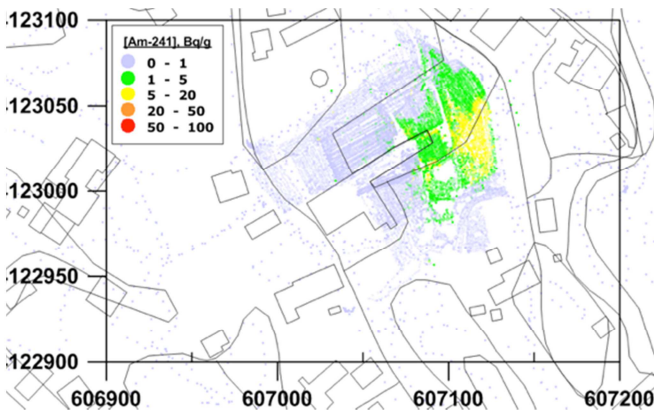
Tabla XXIV: Estimación de las áreas contaminadas en Palomares de acuerdo a los resultados obtenidos en las caracterizaciones radiológicas dinámicas del suelo superficial. La última columna muestra los valores máximos de [^{241}Am] en cada zona. Las incertidumbres se han calculado con un nivel de confianza del 95 %.

Zonas	Área afectada según la [^{241}Am] / ha				Máxima [^{241}Am] / Bq·g ⁻¹
	1-5 Bq·g ⁻¹	5-20 Bq·g ⁻¹	20-50 Bq·g ⁻¹	>50 Bq·g ⁻¹	
Zona 2 Norte	0.95 ± 0.01	0.416 ± 0.004	0	0	29 ± 13
Zona 2 Sur	2.39 ± 0.02	2.26 ± 0.02	1.10 ± 0.01	0.464 ± 0.005	312 ± 128
Zona 3	0.447 ± 0.004	0.189 ± 0.002	0.0040 ± 0.0004	0	54 ± 24
Zona 6	7.64 ± 0.07	0.0300 ± 0.0003	0	0	15 ± 6
Total	11.4 ± 0.1	2.90 ± 0.03	1.10 ± 0.01	0.464 ± 0.005	312 ± 128

Zona 2



Zona 3



Zona 6

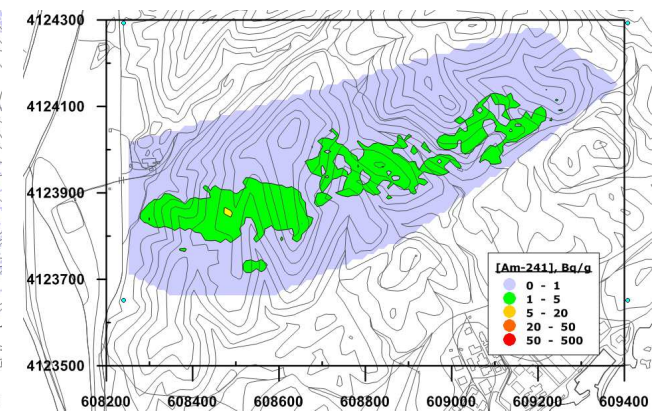
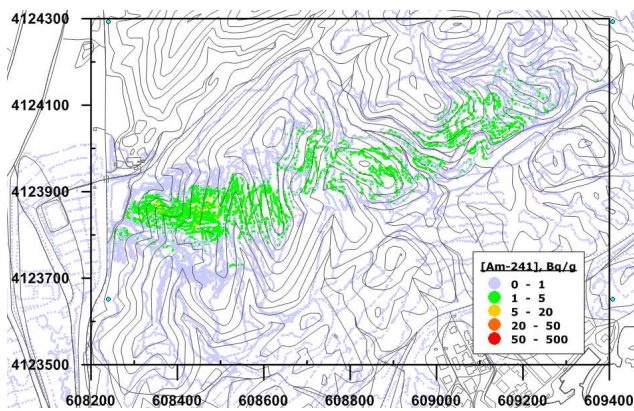


Figura 66. Caracterización radiológica de áreas (en $[^{241}\text{Am}]$) en el suelo superficial de Palomares y modelos de áreas proyectadas en un plano calculadas mediante la interpolación del vecino natural.

La distribución espacial de la contaminación mostrada en la Figura 66 es coherente con la 'Línea Cero' de la Figura 11, aunque con algunas notables diferencias:

- En la zona 2 se observa aún la existencia de contaminación inicial quebrada por la construcción de las balsas. También se observan niveles moderados de contaminación en la escorrentía natural del valle hasta alcanzar el arroyo del Jatico. A este respecto, se efectuó un recorrido del arroyo hasta su desembocadura (~ 2 km) en el mar Mediterráneo sin encontrar contaminación.
- En la zona 3 no se ha detectado la contaminación relacionada que se encontró inicialmente en el lecho O del río Almanzora, lo que se atribuye a los trabajos de remedio inicial y al uso agrícola posterior que supuso el aporte masivo de sustratos ajenos a la comarca para su explotación.
- No existen registros radiológicos de los datos obtenidos en la zona 6 en 1966, por lo que se puede considerar que los datos presentados en esta memoria constituyen la primera caracterización radiológica completa de esta zona*.

Un estudio más detallado de los resultados obtenidos en la caracterización de la zona 2 permite revelar (ver Figura 67) que en el área más cercana al punto de impacto de la bomba existen terrenos muy contaminados. Al objeto de tener un mayor detalle en la caracterización de esta zona se estimó la necesidad de emplear el sistema DINARAD que permite unas mayores resoluciones espaciales y radiológicas. Como se puede observar en la Figura 67, dicha metodología incluso permite detallar los caballones que separan las terrazas del valle. Desde el punto de impacto radiológico, se midió la existencia de una distribución continua y gradual de la [^{241}Am], cuyo valor máximo ($312 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$) está situado, no en el punto de impacto, sino en la terraza colindante que está a una cota inferior de ≈ 1 m de altura. Otra de las observaciones que se deben resaltar es la existencia de una mayor contaminación en ambas laderas de una colina situada hacia el NO del punto de impacto y las terrazas intermedias, así como en zonas discretas sin continuidad espacial (salpicaduras).

Otras de las técnicas empleadas para la caracterización del terreno fue el radar de penetración terrestre (GPR, Ground Penetrating Radar) [139]. Las medidas realizadas en la zona afectada permitieron confirmar la existencia de dos trincheras cuya ubicación se refleja en la Figura 67. Un análisis de la documentación existente, permite suponer que se trata de trincheras empleadas en las acciones de remedio en 1966, que se utilizaban como almacén de residuos contaminados, por lo que pueden contener diversos materiales con distintos grados de contaminación [1]. A continuación se detalla una breve descripción de cada una de estas trincheras:

- Trinchera A: Situada en la zona media de los terrenos expropiados y vallados de la Zona 2, de 400 m^2 de sección y unos 2.5 m de profundidad media, lo que supone un volumen $\approx 1\,000 \text{ m}^3$.

* En el Plan de Vigilancia del PIEM-VR se efectuó una campaña de muestreo de suelo superficial.

- Trincheras B: Situada al O del vallado de la Zona 2, de 1 000 m² de sección y con profundidad variable desde 5 m de profundidad media hasta la superficie (construcción en rampa), que supone un volumen \approx 3 000 m³.

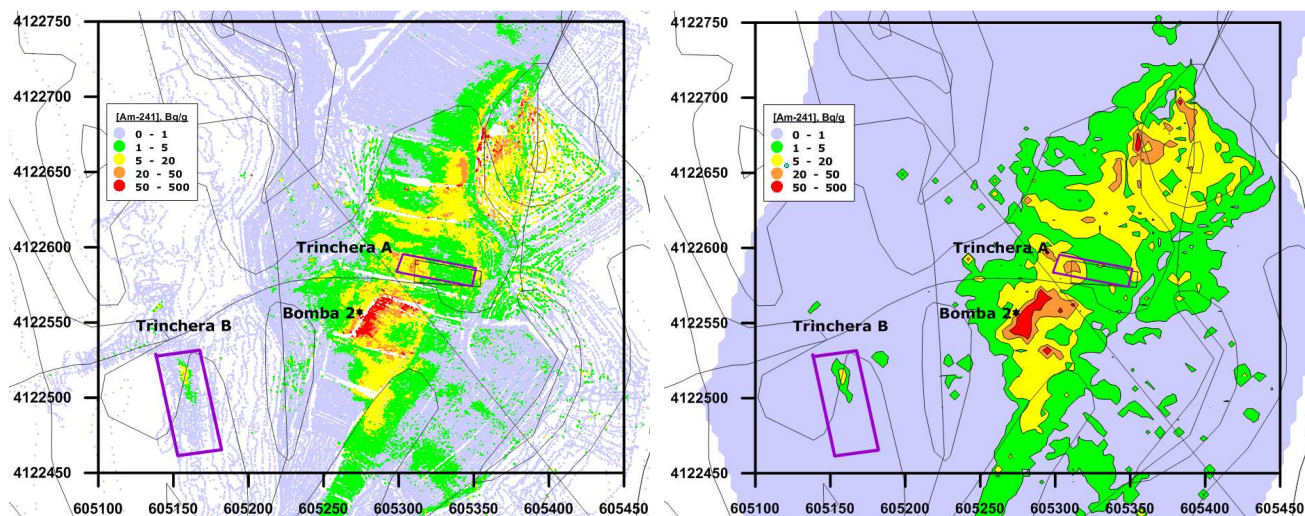


Figura 67: Detalle de 350 x 300 m² de las medidas de la [²⁴¹Am] en los terrenos cercanos al punto de impacto de la bomba nº 2 y las áreas proyectadas en un plano calculadas mediante la interpolación poligonal. Los rectángulos en morado muestran la ubicación de 2 trincheras practicadas en 1966 y localizadas mediante GPR.

3.3.3 Medidas estáticas

Una vez presentados y discutidos los resultados obtenidos de las medidas dinámicas de caracterización radiológica el paso siguiente fue realizar una serie de medidas con mayor tiempo de recuento de manera que se disminuyera la incertidumbre en las estimaciones de [²⁴¹Am]. Por este motivo se realizaron medidas estáticas como parte de la caracterización detallada una vez concluidas las medidas dinámicas. Las medidas dinámicas sirvieron de base para decidir, a juicio de experto, el número de puntos a realizar, la localización de los puntos a medir y si era necesario muestrear tanto el suelo superficial como los testigos de los sondeos efectuados hasta 5 m de profundidad.

Como resultado de esta metodología de trabajo es importante indicar que se efectuaron medidas estáticas espectrométricas y de tasa de dosis en un total de 618 puntos en las zonas afectadas, de la manera siguiente: 419 en la Zona 2, 75 en la Zona 3 y 124 en la Zona 6.

Dada la gran cantidad de resultados las medidas realizadas se representan gráficamente, siguiendo la misma metodología que en el apartado anterior. En la Figura 68 se presentan los resultados de las medidas espectrométricas estáticas (cuadrados vacíos) superpuestos sobre las medidas dinámicas en las proximidades del punto de impacto nº 2 en un tono ligeramente inferior. La comparación cuantitativa de ambos conjuntos de datos no es posible dado que la posición no es exactamente la misma debido al limitado alcance de la geometría de detección. No obstante, es de resaltar la coincidencia cualitativa de los colores en los intervalos seleccionados en esta memoria, que indican que los intervalos de [²⁴¹Am] sirven para comparar los resultados de una y otra metodología y permite exponer

de manera cualitativa la buena correlación entre ambos conjuntos de medidas. Hecho que confirma la calidad de la metodología de trabajo.

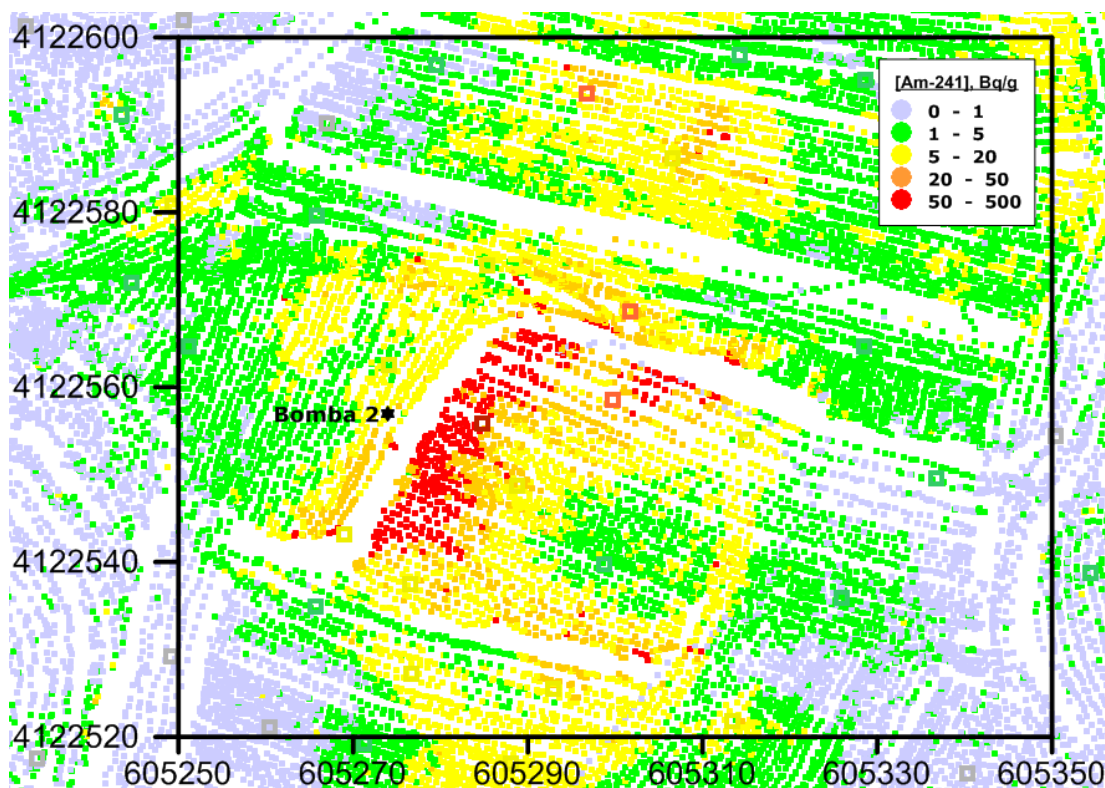


Figura 68: Resultados de las medidas espectrométricas estáticas (símbolos abiertos) superpuestas sobre las medidas dinámicas, ambas realizadas con FIDLER en las proximidades del punto de impacto nº 2.

La Figura 69 muestra los resultados de las medidas estáticas en las distintas zonas del estudio, superpuestas sobre los modelos de áreas proyectadas en un plano calculadas mediante la interpolación del vecino natural derivados a partir de estos mismos resultados. Si se realiza un estudio comparativo entre la Figura 69 y la Figura 66 (relativa a las medidas dinámicas), se aprecia un buen acuerdo tanto en los niveles de $[^{241}Am]$, como en su distribución en la superficie del terreno. En la Tabla XXV se presentan las estimaciones de las áreas afectadas según la $[^{241}Am]$ y los valores máximos de contaminación en cada zona encontrados en la campaña de medidas estáticas.

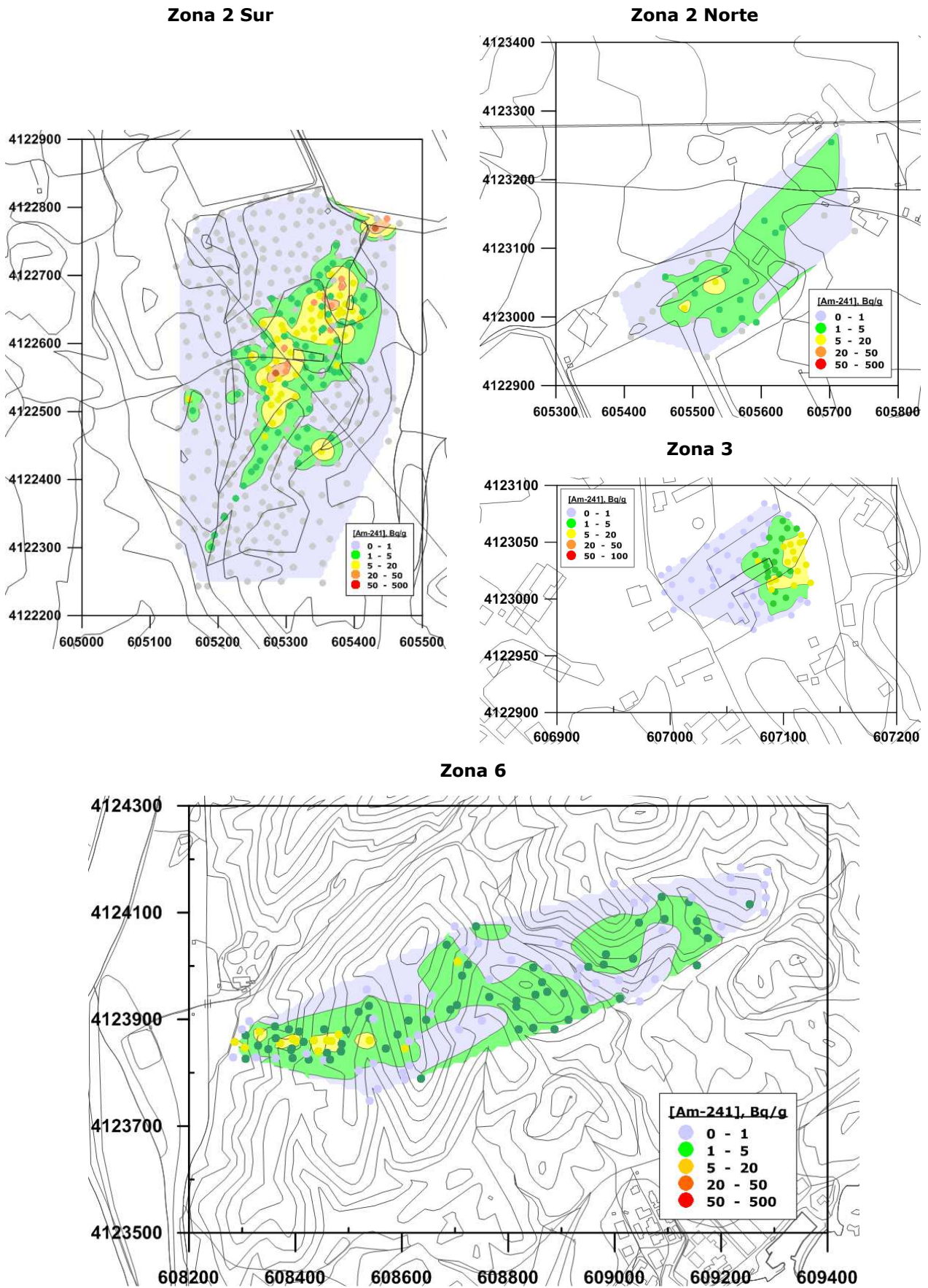


Figura 69. Medidas espectrométricas estáticas (tono oscuro) superpuestas sobre los modelos de áreas de las medidas dinámicas proyectadas en un plano calculadas mediante la interpolación del vecino natural (tono claro).

Tabla XXV: Estimación de las áreas contaminadas en Palomares de acuerdo a las medidas de la caracterización estática del suelo superficial. La última columna muestra los valores máximos de [^{241}Am] en cada zona y su incertidumbre con un nivel de confianza del 95%.

Zonas	Área afectada según la [^{241}Am] / ha				Máxima [^{241}Am] / $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$
	1-5 $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	5-20 $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	20-50 $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	>50 $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	
Zona 2 - N	2.3 ± 0.2	0.10 ± 0.01	0	0	9 ± 1
Zona 2 - S	2.7 ± 0.2	2.0 ± 0.2	0.41 ± 0.04	0.035 ± 0.003	80 ± 11
Zona 3	0.23 ± 0.02	0.11 ± 0.01	0	0	13 ± 2
Zona 6	9.0 ± 0.9	0.45 ± 0.04	0	0	14 ± 2
Total	14 ± 1	2.6 ± 0.2	0.41 ± 0.04	0.035 ± 0.003	80 ± 11

Al comparar estos resultados con los mostrados en la Tabla XXIV se pueden obtener algunas conclusiones parciales, como las siguientes:

- Se midieron diferencias en los valores máximos de [^{241}Am] en las zonas 2 y 3, que se pueden justificar como consecuencia de que las ubicaciones de las medidas en ambas campañas no coincidieron exactamente como se ha explicado en el apartado 3.2.8
- Se observa que la incertidumbre relativa de dichos valores máximos se ha reducido hasta un 12 % debido al mayor tiempo de recuento
- Respecto a las áreas calculadas, se aprecia el efecto de suavizado en los resultados de la campaña de medidas estáticas asociado con un mayor espaciado entre ellas y que causa diferencias al comparar las áreas que superan tanto el criterio de restricción parcial de uso (14 ha de las estáticas frente a 11.4 ha de las dinámicas), como el de restricción total de uso (2.8 ha de las estáticas frente a 4.5 ha de las dinámicas).

En consecuencia, cabe destacar que las medidas espectrométricas estáticas, cuya incertidumbre global relativa para la [^{241}Am] es aproximadamente un 10 %, muestran una gran concordancia con los resultados de las medidas espectrométricas dinámicas, con una incertidumbre para la [^{241}Am] del orden del 30 %, pero a su vez con una resolución espacial que permite detectar más puntos en la misma zona explorada, lo que aumenta la precisión en la localización y el área de las superficies afectadas.

El siguiente paso fue analizar las medidas de tasa de dosis realizadas mediante la técnica de medida en estático. Un primer análisis estadístico de la tasa de dosis, se muestra en la Figura 70. El análisis de los diagramas de caja correspondientes a las medidas de la tasa de dosis en contacto y a 1 m obtenidas en las distintas zonas permite concluir que en todos los casos se aprecia una asimetría en la distribución de los datos que hace que la media y la mediana sean ligeramente diferentes. Además, según el criterio del rango intercuartil, se constatan varios valores atípicos en los datos de las zonas 2 y 3 pero ninguno en la zona 6. Si bien, en esta última zona es notable la amplitud de la distribución,

por lo que se estudiaron los histogramas de los resultados de la tasa de dosis en contacto en dichas zonas que se presentan en la Figura 71.

Dicha asimetría en las distribuciones de la tasa de dosis en la zona 2 no permite asimilarlas a distribuciones normales que, además, no contemplan que la mínima tasa de dosis no es nula sino del orden de $0.03 - 0.04 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ (valores debidos a la componente cósmica típica en esa latitud y altitud [130] [140]). Por ello, se ha empleado la distribución Beta y el rango intercuartil para detectar aquellos valores atípicos en lugar de pruebas, como la de Grubs o de Dixon, que requieren asumir la distribución normal en los datos. Un comportamiento similar se constata en los resultados obtenidos en la caracterización de la zona 3.

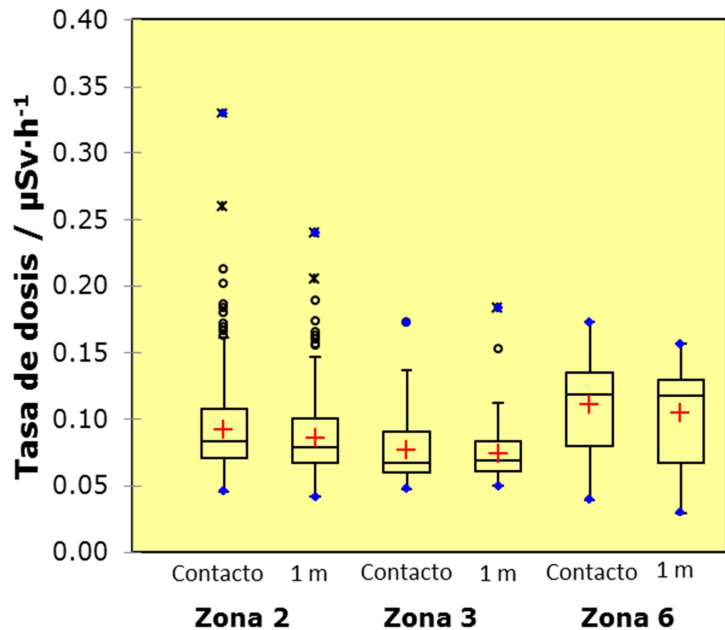


Figura 70. Diagramas de caja de los resultados de las medidas de la tasa de dosis en contacto y a 1 m de altura en las Zonas 2, 3 y 6.

En contraste con lo descrito en el apartado anterior para la zona 2, en la zona 6 se aprecia claramente que coexisten dos distribuciones que se solapan, es decir: la primera con valor más probable en torno a $0.075 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ (similar a los encontrados en las zonas 2 y 3), y la segunda con valor más probable significativamente mayor en torno a $0.12 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$.

En la Figura 72 se representa la localización de las medidas puntuales según el valor de la tasa de dosis sobre el mapa de áreas contaminadas de la zona 6, como se puede observar no se aprecia correlación ni con el nivel de contaminación, ni con la elevación u otra característica del terreno. Este hecho se puede justificar asociado a la orografía existente, como ya se ha mencionado en el apartado 1.3.1, este es un terreno muy escarpado, con barrancos y pendientes pronunciadas donde alternan las lanchas de pizarra con material desmenuzado que se mueve con facilidad cuesta abajo, por lo que es posible que las diferencias observadas se deban a esta heterogeneidad en la disposición del terreno y la presencia desigual de vegetación.

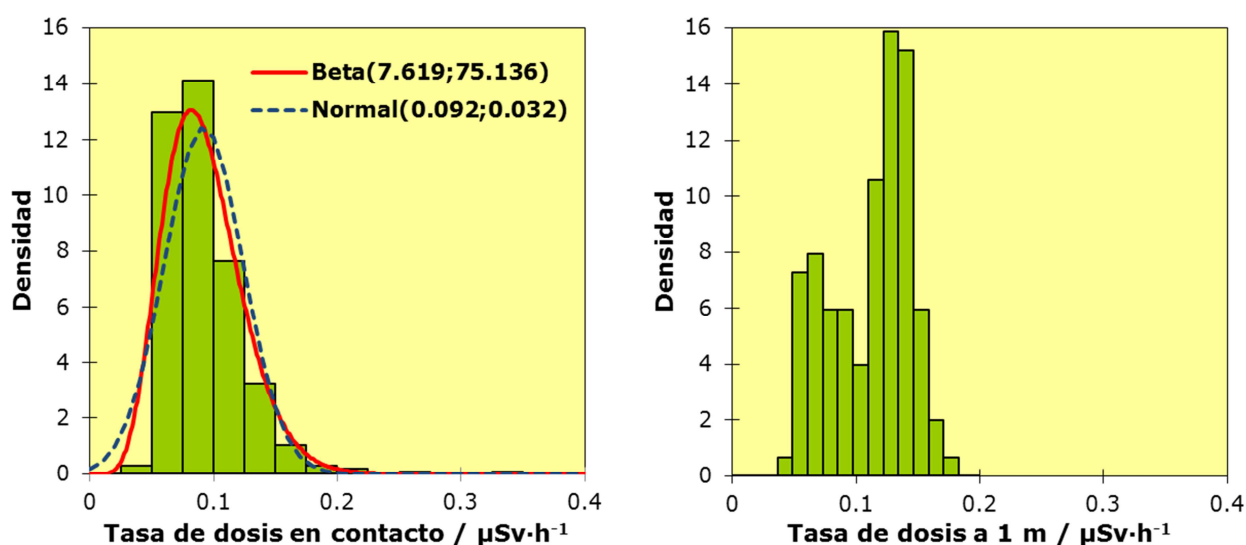


Figura 71. Histogramas de los resultados de las medidas de la tasa de dosis en contacto obtenidos en las Zonas 2 (izquierda) y 6 (derecha).

En la Tabla XXVI se exponen los análisis estadísticos descriptivos de las medidas de la tasa de dosis, y se puede observar que para el caso de los valores de tasa de dosis y con independencia de la zona sometida a estudio no existe diferencia entre las medidas en contacto y a 1 m. El análisis estadístico de las medidas realizadas indica que los valores centrales en la zona 3 son ligeramente inferiores a los de la zona 2, en tanto que los valores en la zona 6 son significativamente superiores; respecto a los valores atípicos, se confirma que aproximadamente el 7.5 % de los datos registrados en las zonas 2 y 3 son atípicamente elevados. El análisis demuestra (Tabla XXVI) que los puntos de medida que indican la existencia de una zona con mayor contaminación se encuentran en las zonas 2 y 3.

Tabla XXVI: Estadísticos de los resultados de las medidas de tasa de dosis en Palomares.

Estadístico	Zona 2		Zona 3		Zona 6	
	Tasa Dosis contacto $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$	Tasa Dosis 1 m $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$	Tasa Dosis contacto $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$	Tasa Dosis 1 m $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$	Tasa Dosis contacto $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$	Tasa Dosis 1 m $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$
Mínimo	0.046	0.042	0.048	0.050	0.040	0.030
Máximo	0.330	0.240	0.173	0.184	0.173	0.157
1º Cuartil (25%)	0.071	0.067	0.060	0.061	0.080	0.068
Mediana (50%)	0.084	0.079	0.067	0.069	0.119	0.118
3º Cuartil (75%)	0.108	0.101	0.091	0.084	0.136	0.130
Límite superior valores atípicos	0.139	0.130	0.114	0.104	0.203	0.211
Media	0.092	0.086	0.077	0.075	0.111	0.105
Desviación típica	0.032	0.026	0.023	0.021	0.032	0.034
Límite inferior de la media (95%)	0.089	0.083	0.072	0.070	0.106	0.099
Límite superior de la media (95%)	0.095	0.088	0.082	0.079	0.117	0.111
Nº de observaciones	419	419	75	75	124	124
Nº de valores atípicos elevados	32	23	5	4	0	0

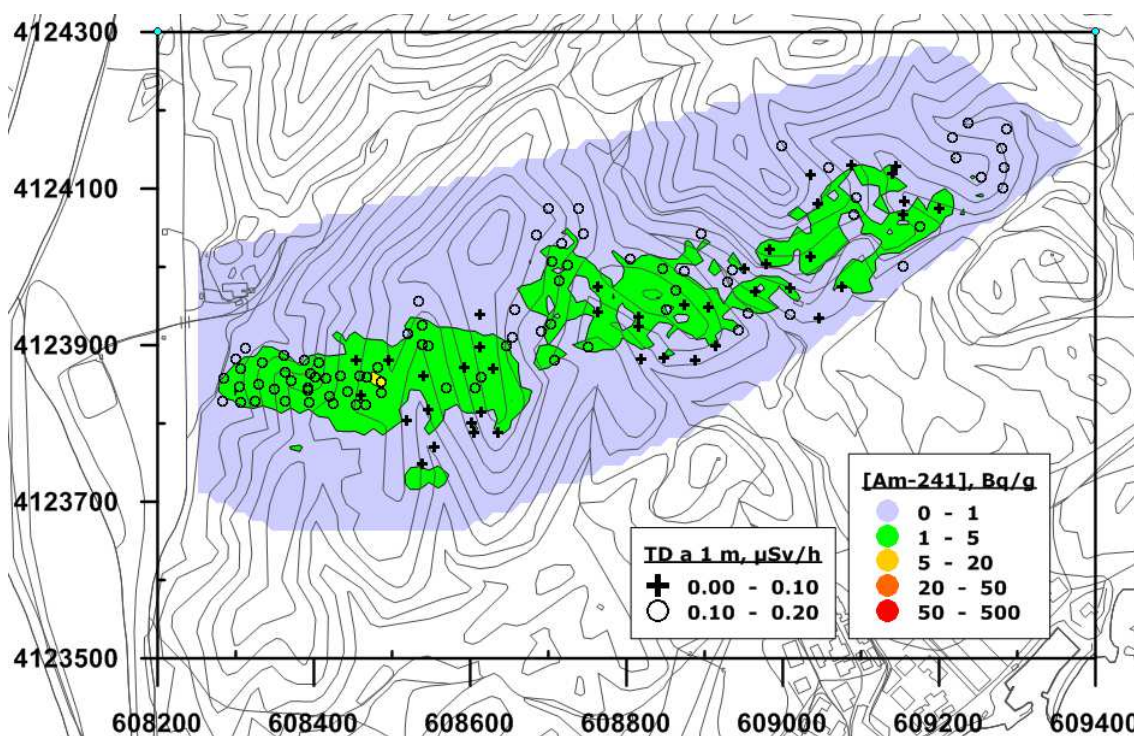


Figura 72. Localización de las medidas de la tasa de dosis a 1 m de altura sobre el terreno en la zona 6.

La modelización de la tasa de dosis debida a un terreno cilíndrico (de 15 cm de espesor y 1 m de radio) de composición Dirt1 contaminado homogéneamente con $[\text{Am-241}] = 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ mediante el empleo del código Microshield® indica que el valor de tasa de dosis es de $0.65 \text{ nSv}\cdot\text{h}^{-1}$ [141]. Esto supone que si se consideran los resultados obtenidos en las caracterizaciones dinámicas de las áreas contaminadas, la tasa de dosis en esas áreas se incrementará sobre el fondo de radiación natural entre $2 - 200 \text{ nSv}\cdot\text{h}^{-1}$, en función de que las zonas de que se trate superen o no el criterio de restricción total de uso, es decir $[\text{Am-241}] = 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ (Figura 73).

La constatación de este hecho experimental corrobora que efectivamente los valores atípicos elevados de la tasa de dosis están asociados con la existencia de contaminación de los terrenos, en particular en la zona 2. Por otro lado es importante remarcar que si bien el incremento máximo medido sobre el fondo natural es de $0.23 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$, esto no supone un impacto radiológico significativo sobre la población dado que dicho valor es, por ejemplo, inferior a la tasa de dosis debida a la radiación natural en algunas regiones de España, como el sur de Galicia o la comarca de la Vera en Extremadura [142].

En último lugar y al objeto de estimar las componentes de la radiación natural (terrestre debida al ^{40}K y a las cadenas naturales de ^{238}U y ^{232}Th , cósmica debida a los muones de alta energía resultado de la interacción de los protones con la atmósfera) y la presencia de posibles radionucleidos antropogénicos (^{137}Cs y ^{241}Am) en las áreas sometidas a estudio en este trabajo de investigación, se efectuó una campaña de medidas estáticas in situ, con el sistema SEGIS, en 34 puntos seleccionados [140]. Los resultados de las medidas obtenidos en esta campaña se resumen en la Tabla XXVII, donde se muestran las medidas realizadas en cada zona tanto en concentración de actividad de los radionucleidos naturales y artificiales, como en la tasa de dosis que cada uno de ellos origina, a la que se

añade la contribución de la radiación cósmica. El análisis de la Tabla XXVII revela que de nuevo en la zona 2 la contaminación existente en el suelo superficial (ya medida y discutida en apartados y puntos anteriores) produce un incremento notable la tasa de dosis. Si bien dicho valor carece de relevancia desde el punto de vista de la protección radiológica de la población.

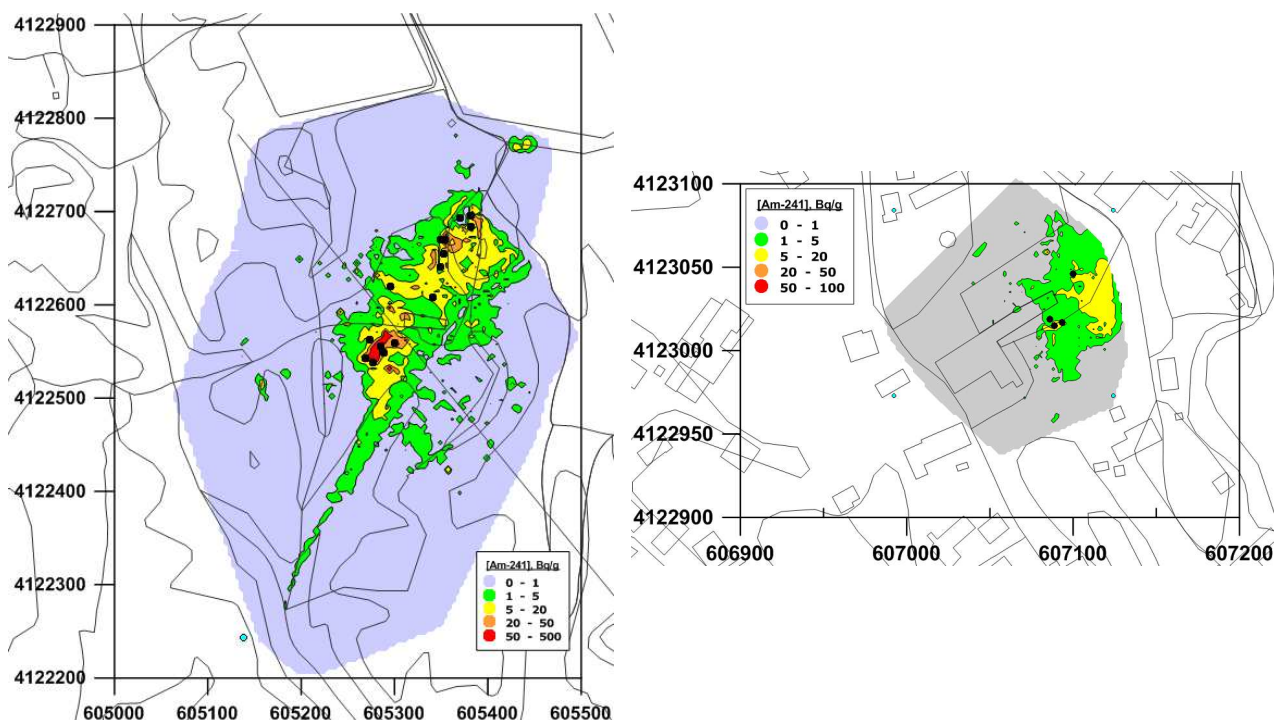


Figura 73. Localización de las medidas atípicas elevadas de la tasa de dosis a 1 m en las zonas 2 (izquierda) y 3 (derecha).

Tabla XXVII: Concentración de actividad determinadas con SEGIS en Palomares y estimación de la tasa de dosis a 1 m que originan.

Fuente	Zona 2		Zona 3		Zona 6	
	[A] / Bq·g ⁻¹	TD 1 m / μSv·h ⁻¹	[A] / Bq·g ⁻¹	TD 1 m / μSv·h ⁻¹	[A] / Bq·g ⁻¹	TD 1 m / μSv·h ⁻¹
²³⁸ U+desc.	0.02-0.04	0.01-0.02	0.02-0.30	0.01	0.05-0.10	0.02-0.06
²³² Th+desc.	0.02-0.06	0.01-0.02	0.02-0.30	0.01	0.08-0.13	0.03-0.06
⁴⁰ K	0.3-0.8	0.01-0.03	0.3-0.4	0.02	0.7-1.4	0.03-0.06
¹³⁷ Cs	0.004	0.001	0.002	0.002	0	0
²⁴¹ Am	0-80	0-0.12	0-6	0-0.01	0-0.2	0
Cósmica	No aplica	0.03	No aplica	0.03	No aplica	0.03
Total	No aplica	0.06-0.22	No aplica	0.08-0.09	No aplica	0.11-0.21

3.3.4 Distribución de la actividad de ^{241}Am en el suelo superficial (0-15 cm)

Una vez se caracterizó el terreno sometido a estudio, el siguiente objetivo es determinar cuál es la distribución de la contaminación en el suelo superficial. Para ello se tomaron distintas muestras inalteradas correspondientes a las profundidades 0 - 5 cm, 5 - 10 cm y 10 - 15 cm en los mismos 618 puntos (descritos en el apartado 3.3.3), lo que supuso la recolección de 1 854 muestras inalteradas. Todas estas muestras fueron medidas en Palomares con el cambiador de muestras [104] [105], lo que supuso más de 3 700 medidas que permitieron disponer de los resultados preliminares tras uno o dos días de la recogida de la muestra. El tiempo de recuento fue de 900 s, que garantizó que la CAMD (^{241}Am) < 0.2 Bq.g⁻¹.

Un ejemplo de los análisis de las medidas realizadas en muestras de la zona 2 se presentan en la Figura 74, donde se observan los resultados obtenidos superpuestos sobre las medidas dinámicas en un tono ligeramente inferior (ver Figura 69). Para visualizar los resultados de las 3 muestras en cada punto se emplean círculos concéntricos de modo que el círculo exterior corresponde a la muestra superficial (0 - 5 cm de profundidad), el intermedio a la muestra central (5 - 10 cm de profundidad) y el interior a la muestra más profunda (10 - 15 cm de profundidad).

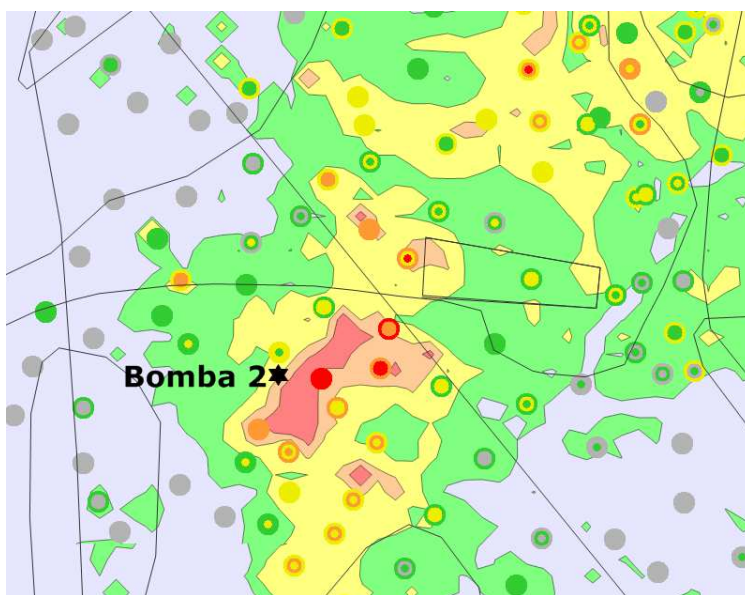


Figura 74: Ejemplo de los resultados de las medidas de [^{241}Am] en muestras inalteradas de suelo superficial. El círculo exterior en cada punto corresponde a 0-5 cm, el intermedio a 5-10 cm y el exterior a 10-15 cm.

En la Figura 75 se representan las medidas realizadas en cada zona con este tipo de representación gráfica, donde se constata la existencia de áreas en los que la [^{241}Am] varía, es decir se incrementa con la profundidad.

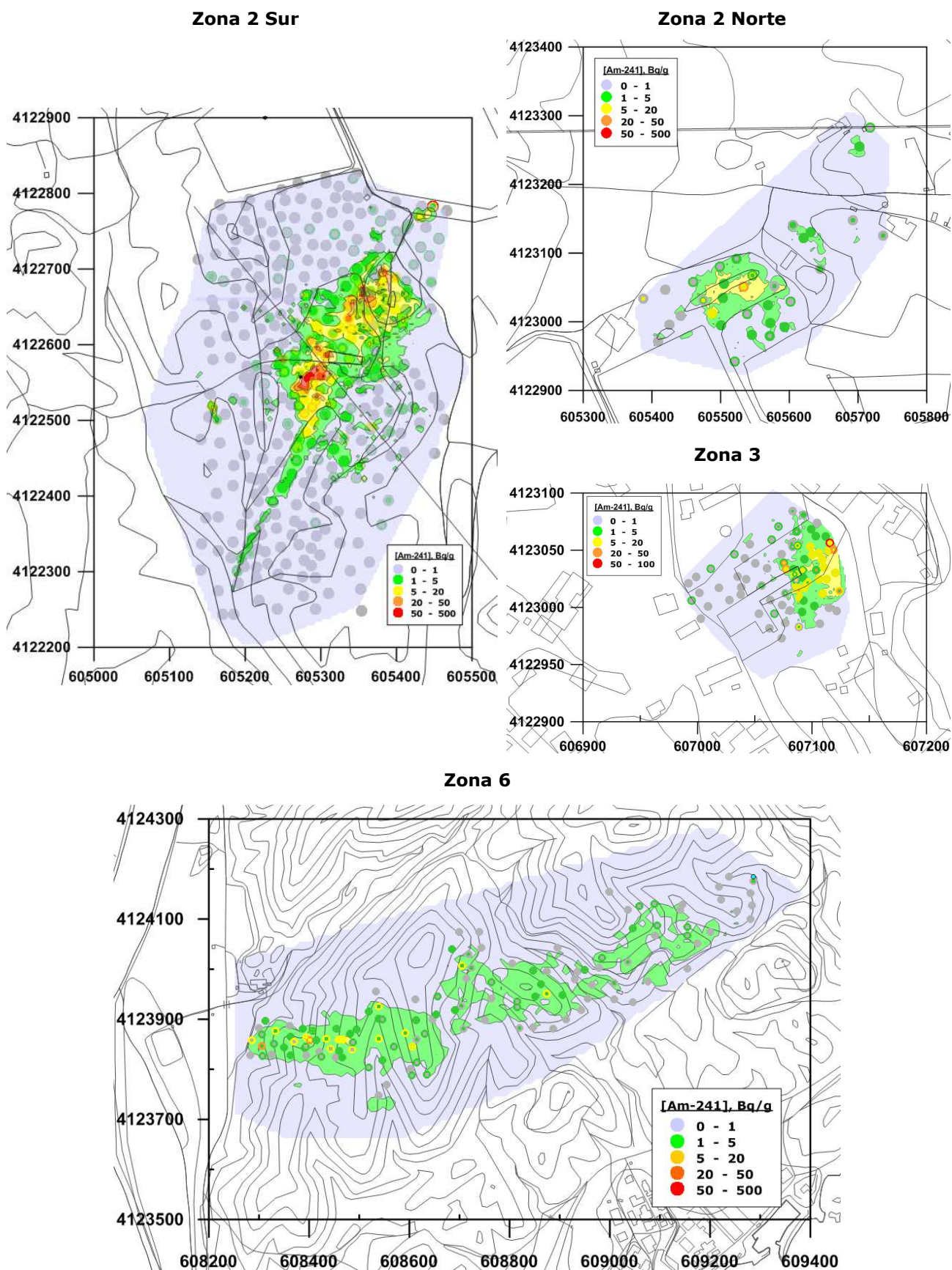


Figura 75. Medidas espectrométricas estáticas (tono oscuro) superpuestas sobre las áreas proyectadas obtenidas a partir de las medidas dinámicas (tono claro), ambas realizadas con FIDLER.

Buscando una mejor visualización de la gran cantidad de información obtenida, la Figura 76 muestra para cada zona los mapas de áreas proyectadas para cada uno de los intervalos de profundidad estudiados: 0 - 5 cm, 5 - 10 cm y 10 - 15 cm. Esta figura permite analizar visualmente si existen variaciones significativas espacialmente que dependan de la profundidad en el suelo superficial, que se complementa con la comparación de las áreas proyectadas calculadas a partir de las medidas dinámicas, estáticas y de las muestras inalteradas del suelo superficial que se presenta en la Figura 77. Del análisis comparativo se puede resaltar lo siguiente:

- En todas las zonas el tramo 0 - 5 cm corresponde aproximadamente con los mapas de la Figura 69, como era de esperar, ya que el 90 % de la fluencia detectada en las medidas estáticas provienen de esa profundidad.
- En las zonas 2 (N y S) y 3, el área de los terrenos afectados y el nivel de [^{241}Am] son similares para los 3 tramos de profundidad de las muestras, lo que hace sospechar que la contaminación continúe en el subsuelo en áreas similares. Sin embargo en la zona 6 se aprecia una disminución importante con la profundidad tanto del área afectada como de los niveles de [^{241}Am], que indica que el alcance máximo de la contaminación debe estar a ese nivel.
- En la zona 2 N se observa que el área de los terrenos con $1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1} < [\text{}^{241}\text{Am}] < 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ obtenido tanto de las medidas estáticas, como de las de muestras inalteradas es el doble que el resultado de las medidas dinámicas, aumentando incluso más con la profundidad de la muestra inalterada. En contraste, el área de los terrenos donde la [^{241}Am] $> 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ es bastante menor para las medidas estáticas y del mismo orden para las medidas dinámicas y las muestras inalteradas.
- En la zona 2 S se determinó que las áreas contaminadas en cada categoría coinciden para las tres metodologías dentro de sus incertidumbres respectivas, si bien en las medidas estáticas y de muestras inalteradas se observa una ligera disminución para el área [^{241}Am] $> 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. En el tramo 0 - 5 cm se observa una zona en la esquina NE que corresponde al único vestigio que permanece de la colina que existía antes de la construcción de la balsa. En la ladera de una colina al NE se aprecia que la contaminación se concentra en el tramo 5 - 10 cm, para disminuir notablemente en la siguiente profundidad. Cerca del punto de impacto nº 2 tanto el área contaminada, como la [^{241}Am] aumentan con la profundidad.
- En la zona 3 se observa que las estimaciones de las medidas dinámicas son mayores que las obtenidas con las medidas estáticas y las de las muestras inalteradas, que a su vez concuerdan bastante bien entre ellas. Existen 2 puntos donde se midieron niveles que incluso eran mayores a los encontrados en superficie.
- En la zona 6 se determinó que el área de los terrenos con $1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1} < [\text{}^{241}\text{Am}] < 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ coincide para las tres metodologías dentro de sus incertidumbres respectivas, apreciándose un incremento del área de los terrenos con [^{241}Am] $> 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en las medidas estáticas y las muestras inalteradas.

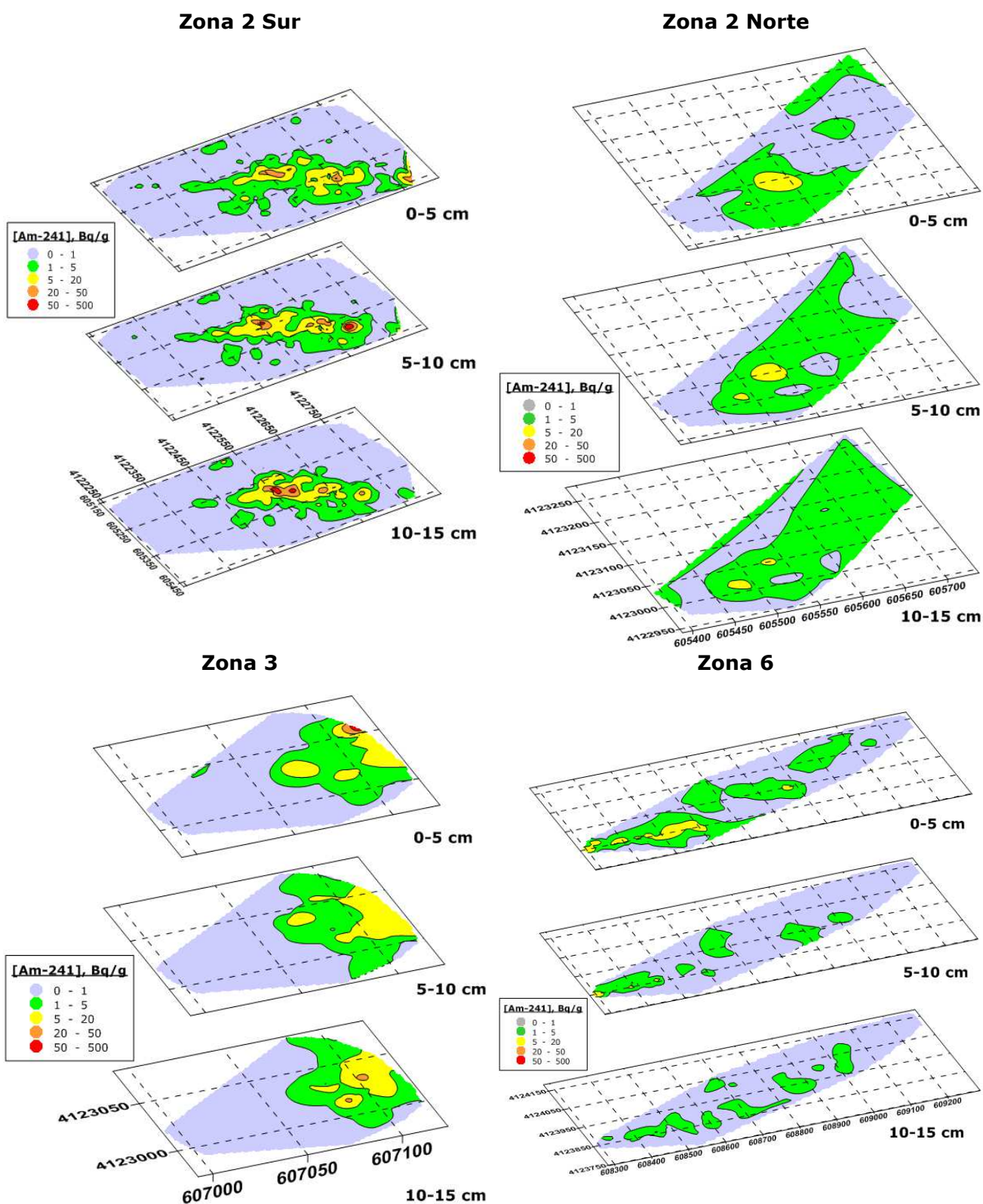


Figura 76. Áreas proyectadas a partir de los resultados de la medida de muestras inalteradas en los tramos de profundidad 0 - 5 cm, 5 - 10 cm y 10 - 15 cm.

Es importante resaltar que a partir de las medidas realizadas y los estudios estadísticos presentados en esta memoria de investigación queda demostrado que las tres metodologías para determinar los niveles de $[^{241}\text{Am}]$ y las áreas afectadas del suelo

superficial muestran una gran concordancia, aunque en algunas medidas estáticas y de muestras se observa la tendencia conservadora de aumentar el área y disminuir la [^{241}Am] debido al menor número de datos disponibles para el modelo geoestadístico.

De este estudio se concluye que la metodología de caracterización propuesta con medidas dinámicas es un método rápido y fiable para la caracterización radiológica del suelo superficial con la que se obtiene una resolución espacial excelente.

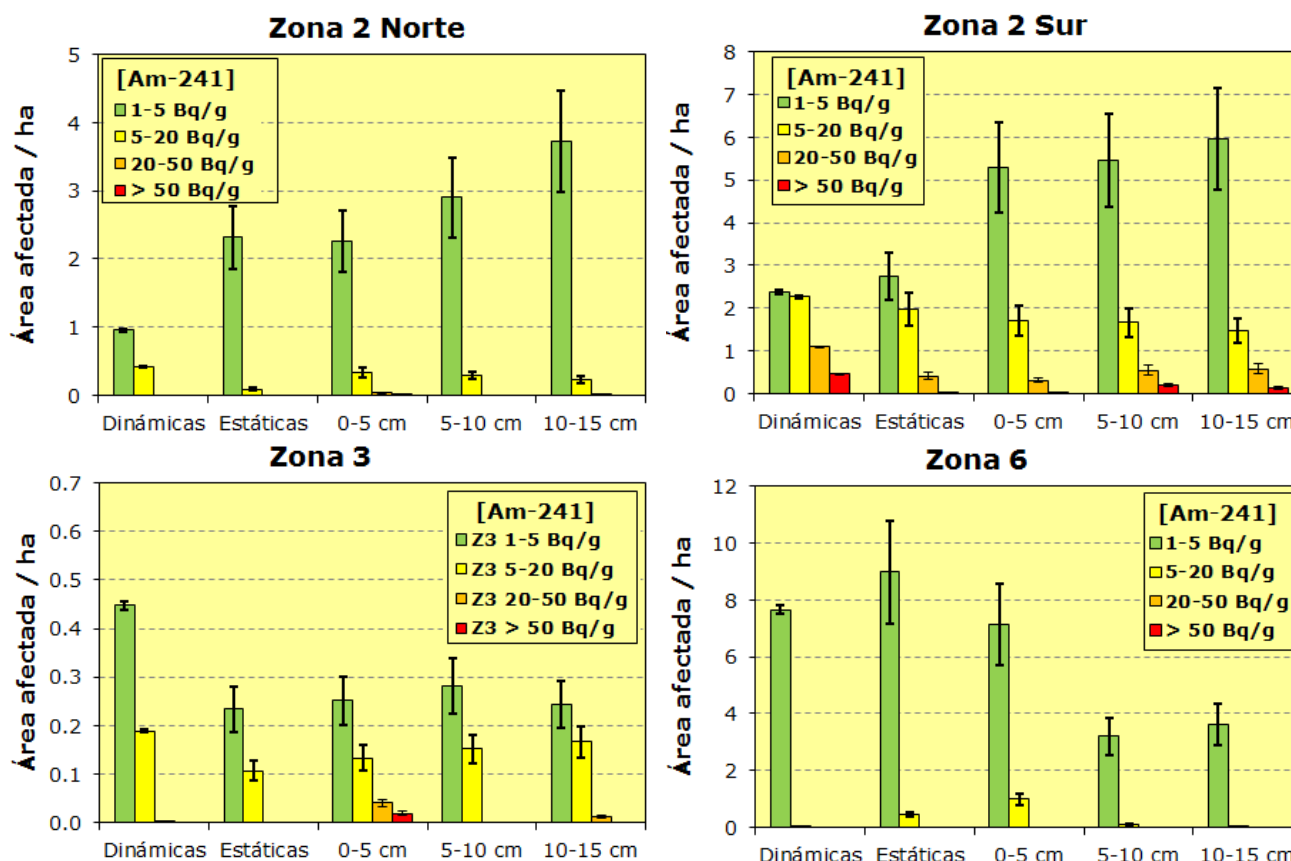


Figura 77. Comparación de las áreas proyectadas calculadas a partir de las medidas dinámicas, estáticas y de muestras inalteradas en los tramos de profundidad 0 - 5 cm, 5 - 10 cm y 10 - 15 cm.

Con objeto de estudiar la distribución de la contaminación en función de la profundidad, con una resolución del orden de 5 mm, se seleccionaron las muestras inalteradas extraídas en 9 puntos de las parcelas más contaminadas en superficie de la zona 2 (Figura 78 izquierda) y su contenido fue cuidadosamente separado en cápsulas de 47 mm de diámetro hasta alcanzar un espesor de 5 mm (Figura 78 derecha). Estas porciones fueron medidas en un detector HP-Ge de modo que la incertidumbre de recuento fuera inferior al 1 % o la CAMD(^{241}Am) < 0.01 Bq·g⁻¹.

Esta metodología de medida permite, gracias a la geometría empleada, efectuar calibraciones experimentales en eficiencia con los discos certificados que se describen en la Tabla XVIII, cuyo espesor y densidad son similares a las porciones preparadas en las cápsulas Petri, por lo que se puede asumir que la autoabsorción es la misma, aunque se aplica la corrección por la densidad aparente de la porción.

Las medidas obtenidas para cada una de las muestras se recopilan en la Figura 79, en la que se representan los perfiles en profundidad de la [^{241}Am] obtenidos; como se puede

observar estos varían entre 0.01 y $1000 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, lo que ilustra la gran variabilidad de la contaminación incluso en localizaciones cercanas entre sí algunos metros. Además, en esta figura se observan varios tipos de perfiles, desde los cuasi-homogéneos (puntos 4 y 5) con algún punto de concentración elevada (puntos 6, 7 y 8) hasta los claramente heterogéneos, donde la contaminación aparece agrupada en torno a una (puntos 1 y 9) o varias profundidades (puntos 2 y 3). Las mayores contaminaciones ($[\text{}^{241}\text{Am}] > 100 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$) se han encontrado en el tramo de 5 - 10 cm del punto 1 y las porciones del punto 8, próximo al punto de impacto nº 2. Estas porciones pueden contener partículas que fácilmente superen los 1000 Bq que, como ya se mencionó, requieren una atención especial desde el punto de vista de la protección radiológica. En algunas muestras, se ha conseguido aislar varias de estas partículas que posteriormente fueron analizadas por microscopía electrónica [50].

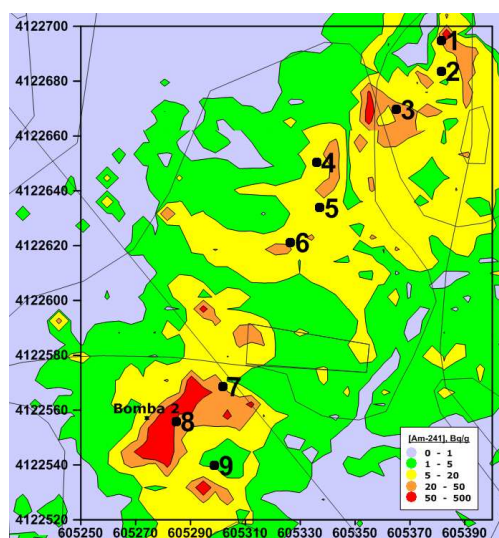


Figura 78. Origen de las muestras inalteradas seleccionadas para el estudio detallado de la distribución de la contaminación en profundidad (izquierda) y su fraccionamiento según la profundidad en cápsulas Petri (derecha).

Examinando los resultados en torno a los 15 cm de profundidad, únicamente en los puntos 2 y 3 se puede concluir que la contaminación parece acabar en el suelo superficial. En los otros puntos, la $[\text{}^{241}\text{Am}]$ varía en el intervalo de $6 - 320 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. En consecuencia, es muy probable que en estos lugares la contaminación continúe a mayores profundidades que el suelo superficial. Hecho relevante desde el punto de vista de las acciones de remedio del terreno dado que la preparación de estas porciones ha consistido sólo en separar mecánicamente con una espátula la tierra según su profundidad, no efectuándose ningún proceso que favorezca la movilidad o concentración de la actividad.

En comparación con las medidas de las muestras inalteradas, los niveles de $[\text{}^{241}\text{Am}]$ son más extremos, alternando en ocasiones porciones muy contaminadas con otras que apenas lo están. Evidencia experimental que se justifica como consecuencia de que la contaminación radiactiva se encuentra en forma de partículas, que en su estado de agregación con partículas pasivas puede alcanzar dimensiones discretas del orden de mm que dificultan su distribución homogénea en muestras con un espesor del mismo orden. Por tanto, al referir los niveles de contaminación en los suelos de Palomares es necesario referir tanto la posición geográfica como el intervalo de profundidad donde se obtuvo la muestra.

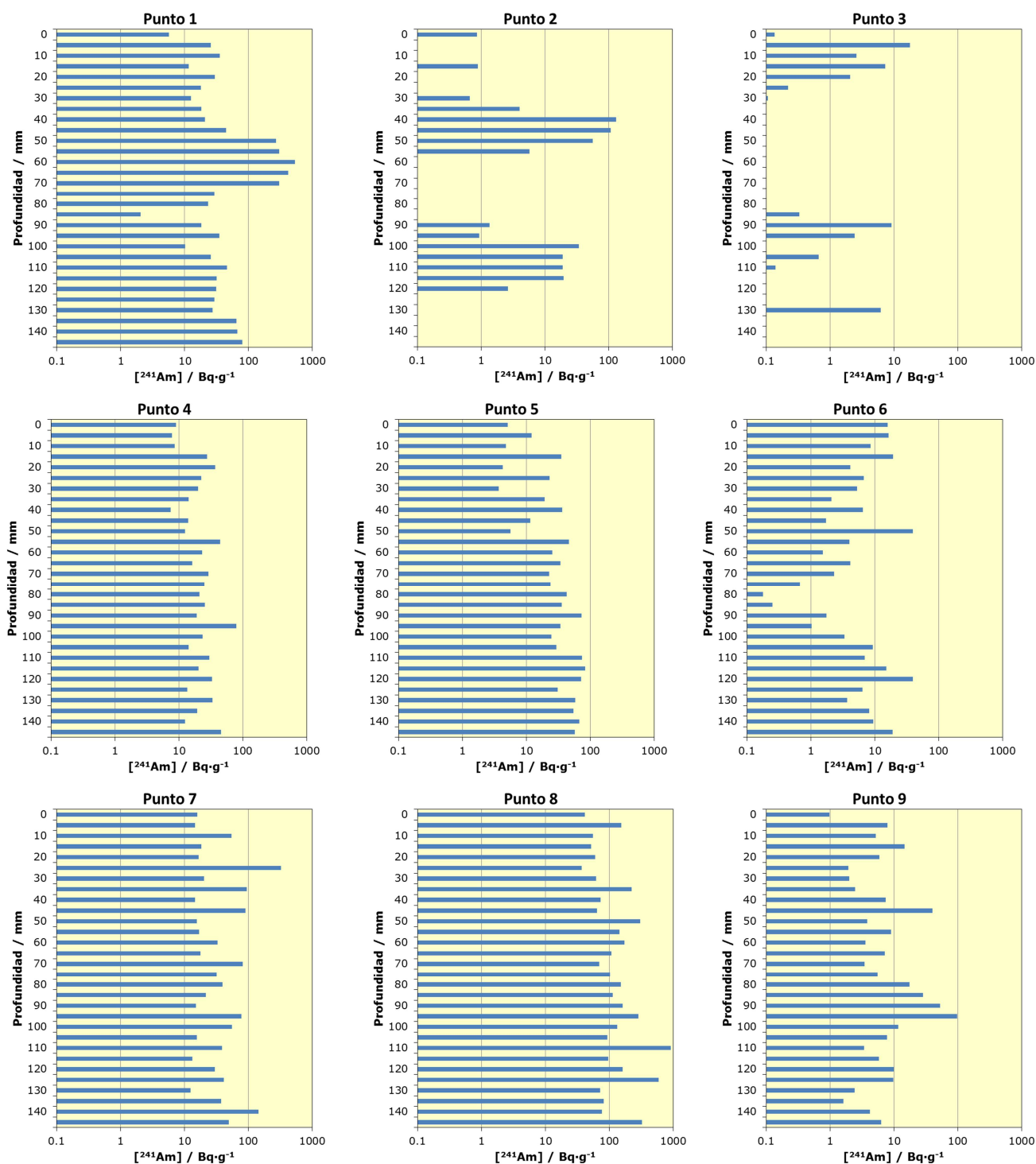


Figura 79. Variación de la ^{241}Am con la profundidad en el suelo superficial de nueve puntos de muestreo en la zona 2.

En la Figura 80 se comparan los resultados de ^{241}Am medidos previamente en las muestras inalteradas con FIDLER y HP-Ge con los resultados calculados a partir de las porciones que las integraron. En este último caso, la ^{241}Am se obtuvo como el cociente de la suma de la actividad determinada en cada porción por la suma de la correspondiente masa. Para facilitar al lector la comprensión se consideró que las gráficas de la Figura 80 tengan la misma escala lo que permite apreciar de manera clara el efecto de suavizado que se produce en las dos primeras, que modera la estimación del nivel de contaminación.

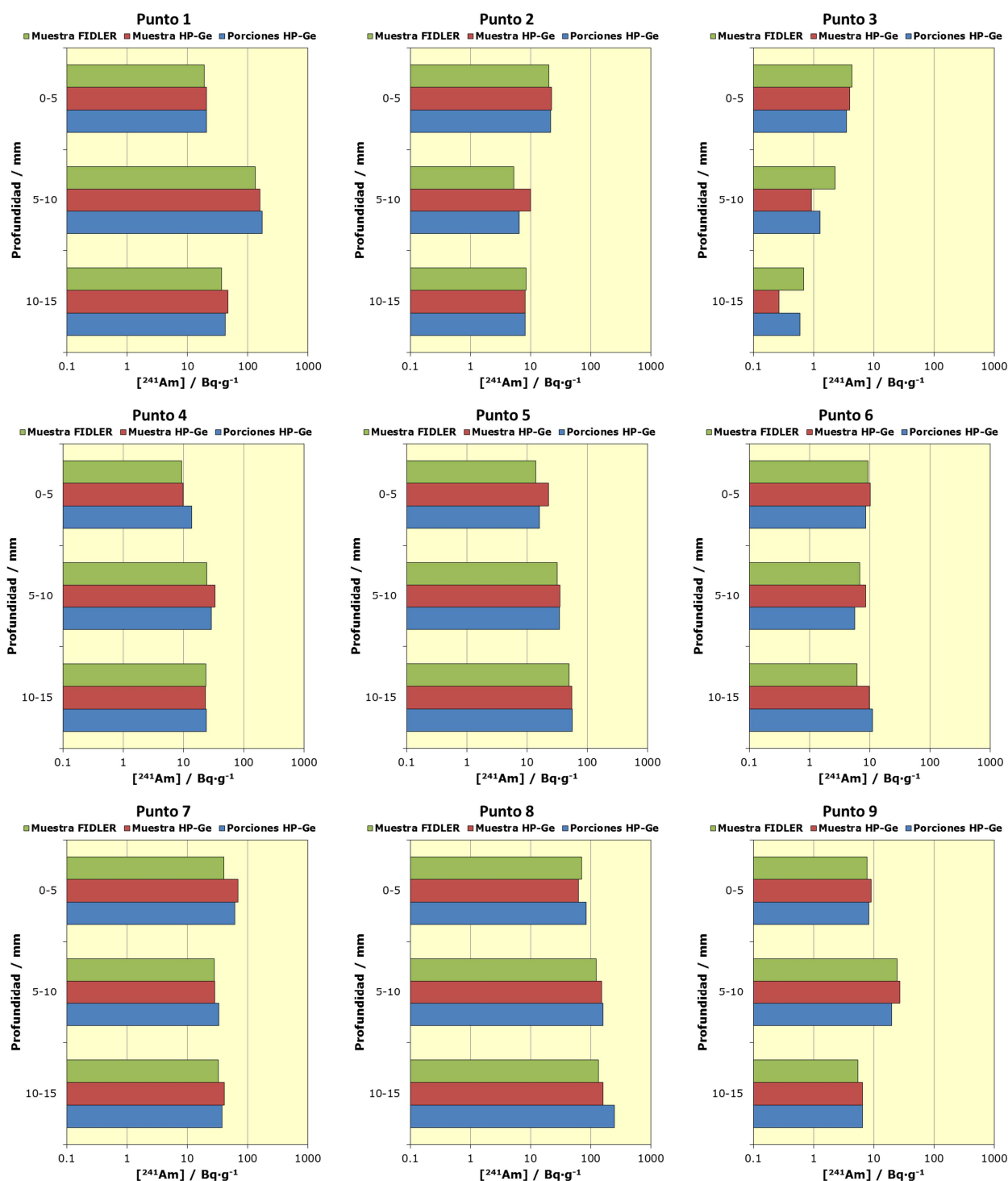


Figura 80. Comparación de las ^{241}Am estimadas en las muestras inalteradas mediante su medida directa con FIDLER y HP-Ge y la calculada a partir de las fracciones separadas en función de la profundidad. Para cada punto se mantiene la escala para facilitar la comparación con la figura anterior.

Del estudio realizado se puede concluir que los resultados de las 3 metodologías presentan un buen acuerdo entre ellas. Las discrepancias existentes se cuantificaron mediante el análisis de regresión lineal tomando como referencia los resultados de las porciones. Dichos resultados se ofrecen en la Figura 81.

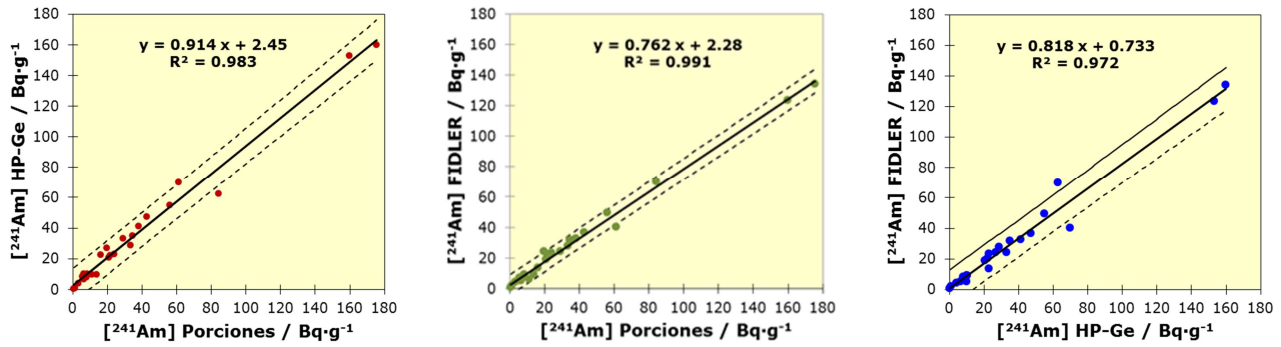


Figura 81: Análisis de regresión lineal $y = a \cdot x + b$ entre los resultados obtenidos al comparar las estimaciones de $[^{241}\text{Am}]$ obtenidas con la medida de muestras inalteradas con FIDLER y HP-Ge con las derivadas de las medidas tras su fraccionamiento en porciones. Las líneas a trazos indican el intervalo de confianza del 95 % para las observaciones.

Como se observa en la Figura 81, en ambos casos se obtienen coeficientes de determinación $R^2 > 0.98$, con valores de la constante superiores a $2 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ y las pendientes de los ajustes son diferentes de la unidad, indicando que las medidas con HP-Ge y FIDLER tienden a subestimar la $[^{241}\text{Am}]$ un 9 y un 24 %, respectivamente (al compararse con las medidas de las porciones). Esto se debe al sesgo introducido al seleccionar para el estudio muestras con elevada contaminación, ya que la pendiente del análisis de las medidas de muestras inalteradas con FIDLER y HP-GE (Figura 81 derecha: $a = 0.82 \pm 0.06$, $k = 2$) es significativamente diferente de la presentada en la Figura 57 para la zona 2 ($a = 0.92 \pm 0.02$, $k = 2$), aunque en ambos casos la constante puede considerarse nula al ser en valor absoluto inferior a su incertidumbre. Con esta consideración, se puede concluir que la medida de $[^{241}\text{Am}]$ en muestras inalteradas coincide dentro de 15 % con las medidas de sus porciones en una geometría más conveniente por su reducida autoabsorción al reducir el espesor de las muestras a medir.

3.4 Caracterización radiológica del subsuelo (0.2 – 5 m)

Para la caracterización radiológica del subsuelo fueron necesarias la realización de sondeos, su control radiológico y toma de muestras [143]. En total se efectuaron 321 sondeos en las Zonas 2 (incluyendo el perímetro de la balsa Este y las trincheras A y B), 3 (incluyendo el interior del edificio construido sobre material de relleno en el punto de impacto) y 6. La profundidad típica fue de 2.40 m y las máximas variaron entre 0.5 m (en la zona 6) y 6 m (algunos sondeos de la zona 2).

En la Figura 82 y la Figura 83 se muestran gráficamente los resultados obtenidos en dicha caracterización radiológica del subsuelo. Para una fácil comprensión de los resultados obtenidos en primer lugar se muestran una secuencia de mapas en los que se indican los resultados de las medidas realizadas con HP Ge en las muestras de los testigos agrupados en 8 tramos de profundidad a modo de secciones transversales perpendiculares al eje vertical de la contaminación. Ello permite estudiar las superficies afectadas en cada tramo de profundidad y su evolución con la misma. Es conveniente indicar que en estos mapas se refleja la identificación de algunos sondeos con objeto de presentar en otra figura algunos perfiles de la contaminación en profundidad típicos o peculiares en cada zona obtenidos con el Mini-FIDLER, empleando en todos estos perfiles las mismas escalas para facilitar la

comparación entre ellos. Si bajo el número del sondeo no aparece el símbolo coloreado significa que en ese tramo de profundidad no se estimó necesario extraer una muestra porque las medidas con Mini-FIDLER indicaban que $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.

Los sondeos realizados y cuyos resultados se muestran en la Figura 83 permiten comprender mejor los resultados y obtener algunas importantes observaciones experimentales:

- El sondeo 2566 se perforó en el perímetro de la balsa E y es representativo de la mayoría de los sondeos efectuados en la zona 2 N, donde no se aprecian valores de la $[^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ a ninguna profundidad.
- A unos 100 m hacia el E se practicó el sondeo 2568, cuyos resultados son similares al anterior salvo en el tramo de profundidad 10 - 20 cm donde la $[^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, posiblemente restos del desmonte de la colina para construir la balsa E.
- Siguiendo hacia el E, el perfil del sondeo 2555 realizado en la cumbre de la colina confirma que la $[^{241}\text{Am}]$ llega incluso a $10 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en los primeros 30 cm de suelo de la colina pero a mayor profundidad es ya inferior a $1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. Esto se debe a que la colina ha permanecido inalterada desde el accidente y la contaminación que aún persiste no ha penetrado el suelo superficial.
- El sondeo 2535 es singular pues aparece $[^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en el tramo 20 - 60 cm de profundidad. Algunos sondeos practicados a su alrededor confirman este patrón de la contaminación en este punto, que afecta a una superficie de $\approx 500 \text{ m}^2$.
- El sondeo 2543 se perforó en una parcela dedicada a la agricultura y no se observan valores de la $[^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en ninguna profundidad.
- Por último, el sondeo 2523 confirma que la $[^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en los primeros 40 cm, lo que se confirma en un par de sondeos cercanos, estimándose en $\approx 300 \text{ m}^2$ el área afectada. Este terreno es un huerto de frutales y olivos que ya existía en 1966 y la penetración de la moderada contaminación que aún persiste se debe al mantenimiento propio de la tierra.

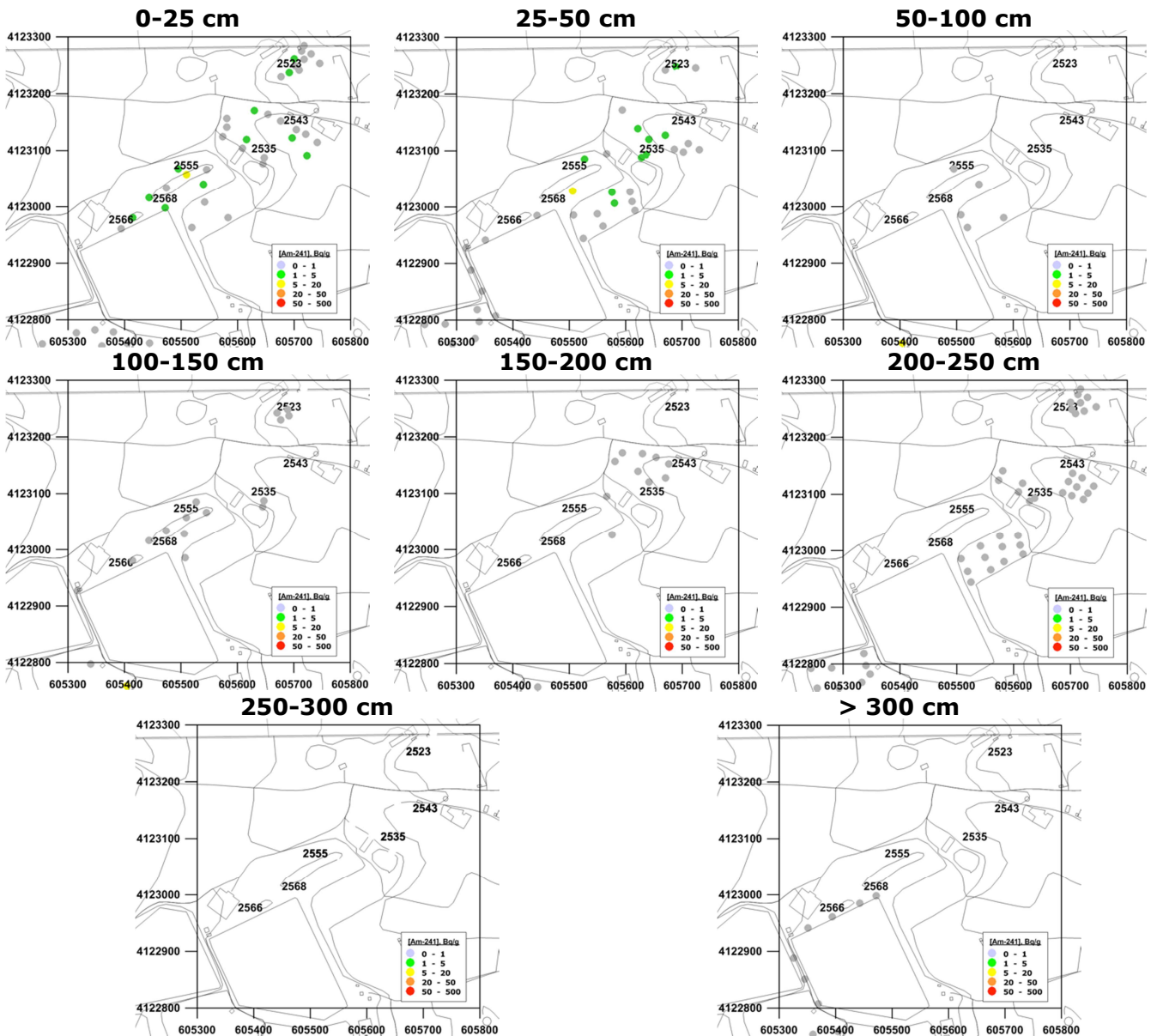


Figura 82: Resultados de los análisis con HP Ge de las muestras obtenidas de los testigos de los sondeos efectuados en la zona 2 N agrupados en diversos tramos de profundidad.

A partir de las medidas realizadas en los sondeos, ya representados en la Figura 82, el paso siguiente fue estudiar los perfiles de la distribución de la $[^{241}\text{Am}]$ con la profundidad en aquellos puntos más característicos de la zona 2 N. En la Figura 83 se representan los resultados obtenidos de dicho análisis, donde se observa que la contaminación desaparece totalmente al superar los 50 cm de profundidad y que la $[^{241}\text{Am}] < 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ excepto en un par de puntos situados en la cumbre de la colina situada justo al N de la balsa E (sondeo 2555). Es necesario recordar que esta colina es la excepción en la zona 2 N ya que el resto de ella ha sido alterada para construir la balsa, accesos y terrazas para la explotación agrícola y ganadera.

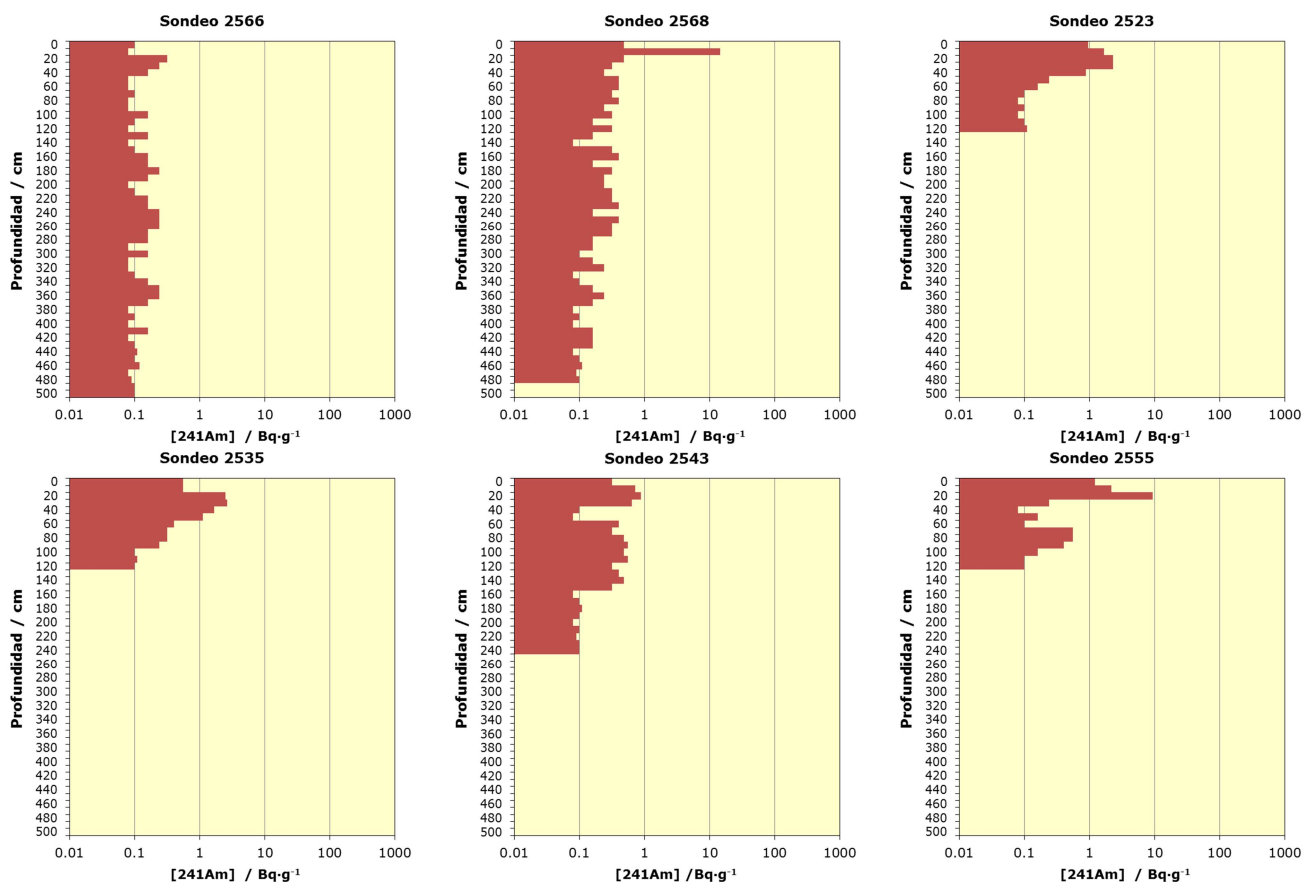


Figura 83: Distribución de la $[^{241}\text{Am}]$ en función de la profundidad obtenidos a partir de las medidas efectuadas con Mini-FIDLER sobre los sondeos efectuados en la zona 2 N. La localización de cada sondeo se muestra en la Figura 82.

Siguiendo una metodología similar a la anterior, la Figura 84 muestra una diversidad de distribuciones de la $[^{241}\text{Am}]$ con la profundidad en la zona 2 S, que se relacionan con los cambios del terreno para distintos usos desde el accidente, que incluyen zonas no alteradas (colinas), terrazas y desmontes para aumentar la superficie cultivable y la estructura en capas observada en las trincheras practicadas en 1966. Todo ello se ilustra y justifica en los perfiles de actividad medidos en los sondeos, un ejemplo de algunos de ellos se muestran en la Figura 85.

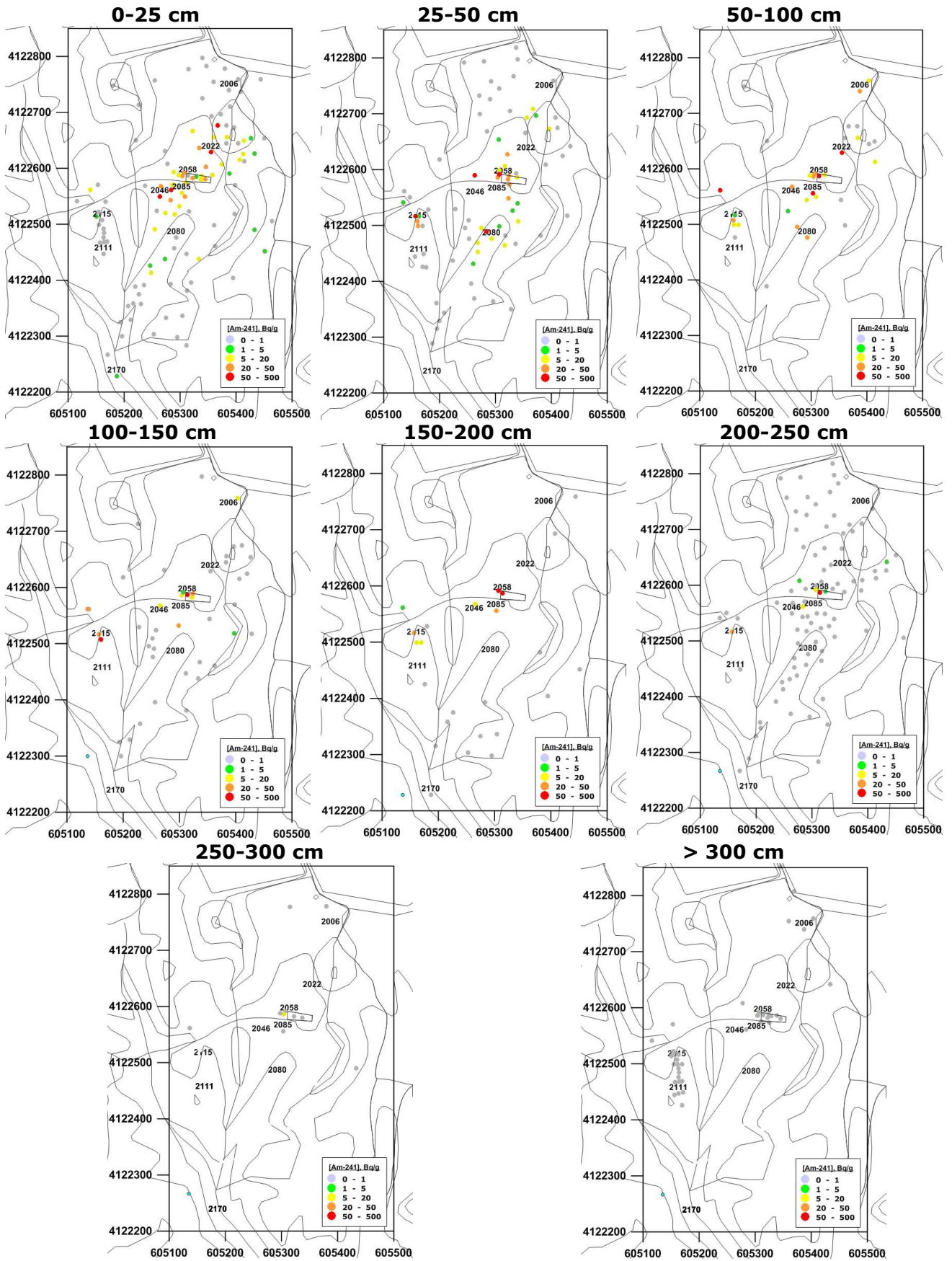


Figura 84: Resultados de los análisis con HP Ge de las muestras obtenidas de los testigos de los sondeos efectuados en la zona 2 S agrupados en diversos tramos de profundidad.

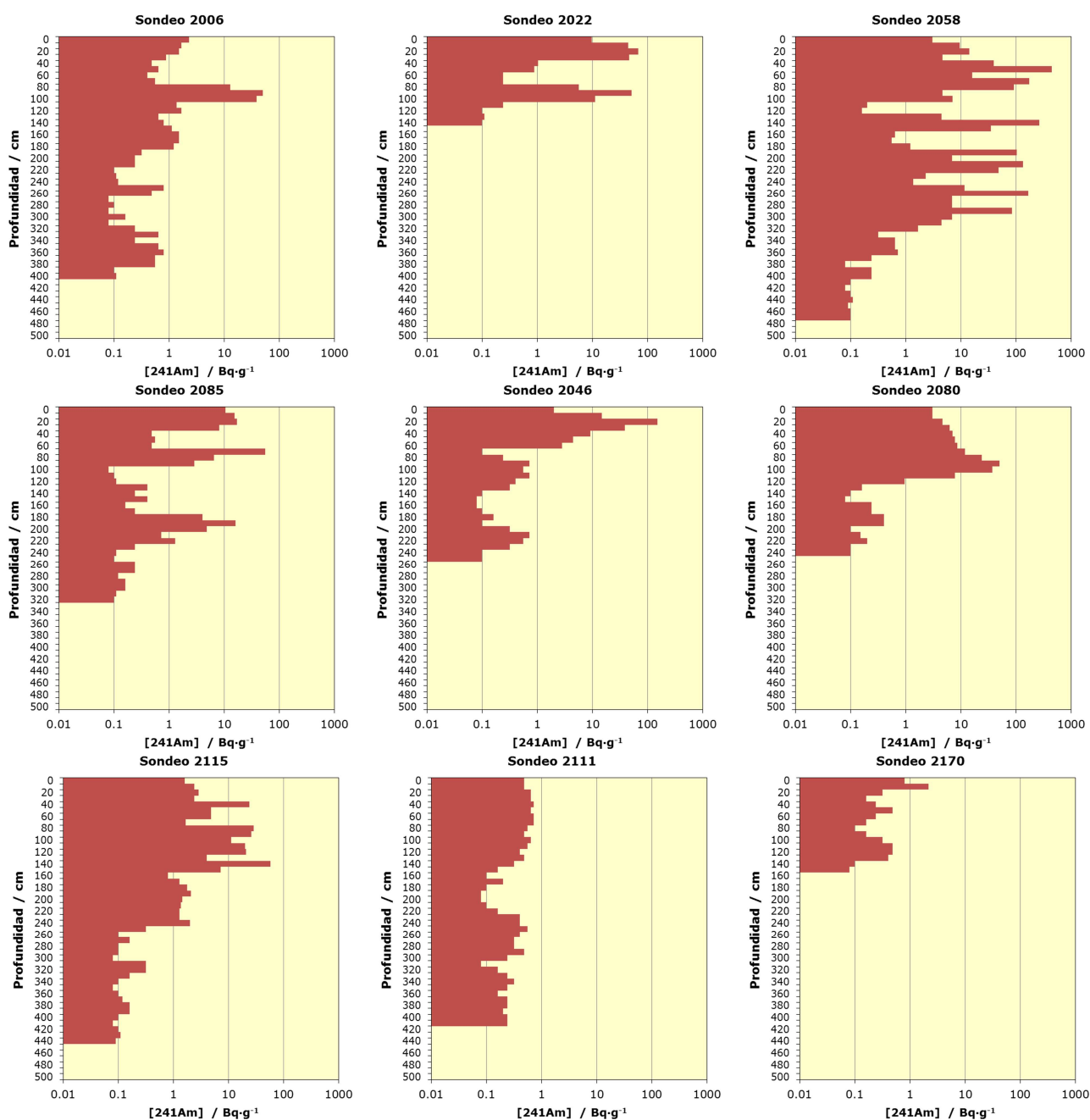


Figura 85: Distribución de la $[^{241}\text{Am}]$ en función de la profundidad obtenidos a partir de las medidas efectuadas con Mini-FIDLER sobre los sondeos efectuados en la zona 2 N. La localización de cada sondeo se muestra en la Figura 84.

Al igual que en el caso anterior estos sondeos (mostrados en la Figura 85) permiten obtener las apreciaciones siguientes:

- El sondeo 2006 muestra una contaminación moderada en superficie pero entre los 80 y 110 cm muestra una capa con $[^{241}\text{Am}] > 50 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ que se confirma con otro sondeo distante unos 20 m hacia el N, lo que indica que existe una zona contaminada a dicha profundidad de $\approx 300 \text{ m}^2$ de área. Esta terraza ha sido alterada para su explotación agrícola, con movimientos de terreno importantes y posiblemente aporte de tierras.

- El sondeo 2022 se practicó en la confluencia de la colina NE de la zona 2 S con el valle y muestra una $[^{241}\text{Am}] > 10 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en superficie, lo que se observa también en otros sondeos realizados en dicha colina. Pero además, este sondeo presenta otra capa de contaminación similar entre 80 y 120 cm que no ha sido observada en los sondeos vecinos. El terreno es bastante inestable por estar en la escorrentía natural de la colina, lo que podría explicar la penetración de la contaminación.
- El sondeo 2058 fue uno de la docena de sondeos perforados en la posible ubicación de la trinchera A y localizada mediante GPR. Muestra claramente una estructura en capas de unos 30 - 40 cm y alternando material con $[^{241}\text{Am}] > 100 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ con tierra menos contaminada, así hasta alcanzar los 3 m de profundidad. Los sondeos circundantes confirman este patrón, que se va diluyendo al acercarse a los límites predichos de la trinchera. Claramente esta trinchera fue utilizada en las acciones de remedio de 1966 y fue rellenada con material que entonces no se consideró contaminado.
- El sondeo 2085 se perforó en el área más contaminada según la caracterización radiológica del suelo superficial, lo que se confirma en sus perfiles en profundidad ya que en los primeros cm aparecen $[^{241}\text{Am}] \approx 10 - 100 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. Además, se observan dos capas contaminadas en 80 - 120 cm y 180 - 220 cm de profundidad que de nuevo puede ser explicado por las acciones de remedio iniciales donde se limpiaba la contaminación y se rellenaba con suelo local que se entendió entonces libre de contaminación.
- El sondeo 2046 también se perforó en la zona más contaminada en el suelo superficial, pero a una cota 1.5 m más elevada que el sondeo anterior. Se aprecia de nuevo que $[^{241}\text{Am}] \approx 100 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ a 20 cm de profundidad, pero que $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ a partir de los 60 cm.
- Los sondeos 2115 y 2111 se practicaron en la ubicación prevista por GPR para la trinchera B, situada en el valle vecino al O del punto de impacto nº 2. Como en el caso del sondeo 2058, en el sondeo 2115 se aprecia una estructura en capas de material con $[^{241}\text{Am}] > 10 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ y material menos contaminado, del orden de $[^{241}\text{Am}] \approx 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, hasta alcanzar una profundidad de 240 cm, donde se alcanzan los niveles medidos en el sondeo 2111 donde no se aprecia ningún tramo del perfil con $[^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.
- El sondeo 2080 se perforó en la zona del valle que ya se estrecha de modo importante y puede considerarse que empieza la escorrentía natural hacia el S para llegar al arroyo Jatíco. Además, en este terreno se habilitó una pequeña terraza para su explotación agrícola. Su perfil muestra claramente un incremento progresivo en la $[^{241}\text{Am}]$ hasta alcanzar los 120 cm de profundidad, a partir de la cual el nivel de contaminación desaparece. Podría aventurarse que la razón de este perfil está relacionado con el arrastre inicial de material contaminado en la cabeza de la escorrentía, pero la acción del hombre en este terreno introduce dudas razonables a esta hipótesis.
- El sondeo 2170 se efectuó en la confluencia del valle de la zona 2 con el arroyo Jatíco y en su perfil se observó una $[^{241}\text{Am}] \approx 2 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ sólo a 10 cm de profundidad. Este resultado está de acuerdo con los obtenidos en las medidas dinámicas, estáticas y de muestras inalteradas de esa zona y confirma que la contaminación puede ser arrastrada físicamente aguas abajo por las precipitaciones, si bien es cierto que la contaminación del suelo superficial

observada en la escorrentía e incluso hacia la desembocadura del arroyo Jatíco en el Mar Mediterráneo es $[^{241}\text{Am}] \ll 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.

Siguiendo el mismo esquema para presentar los resultados de los sondeos, para la zona 3 la Figura 86 muestra los resultados del análisis de las muestras obtenidas de los testigos de los sondeos y medidas con HP Ge, agrupados por tramos de profundidad. La Figura 87 presenta los perfiles más característicos o peculiares. Hay que recordar que la zona 3 ha sido alterada para su uso agrícola y ganadero, e incluso residencial.

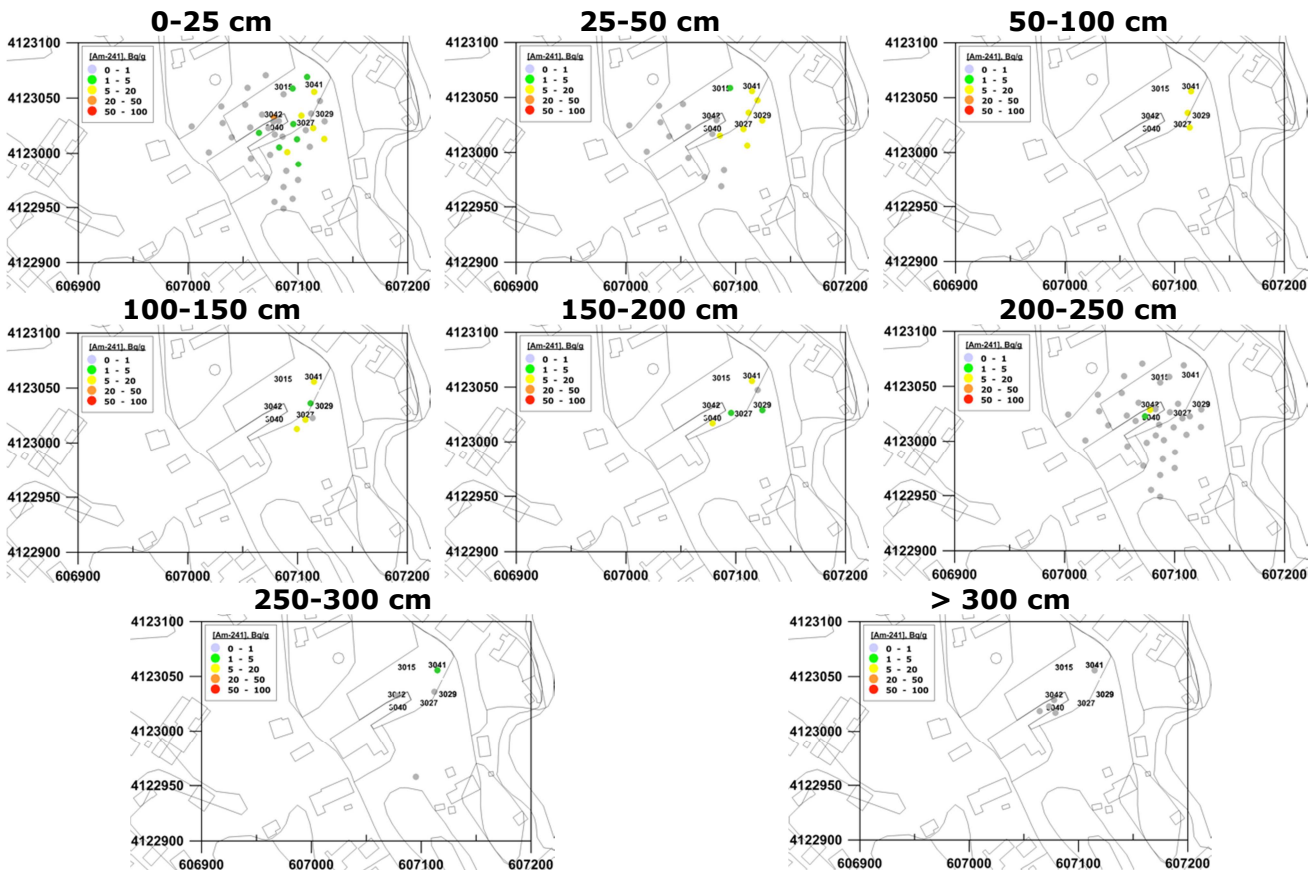


Figura 86: Resultados de los análisis con HP Ge de las muestras obtenidas de los testigos de los sondeos efectuados en la zona 3 agrupados en diversos tramos de profundidad.

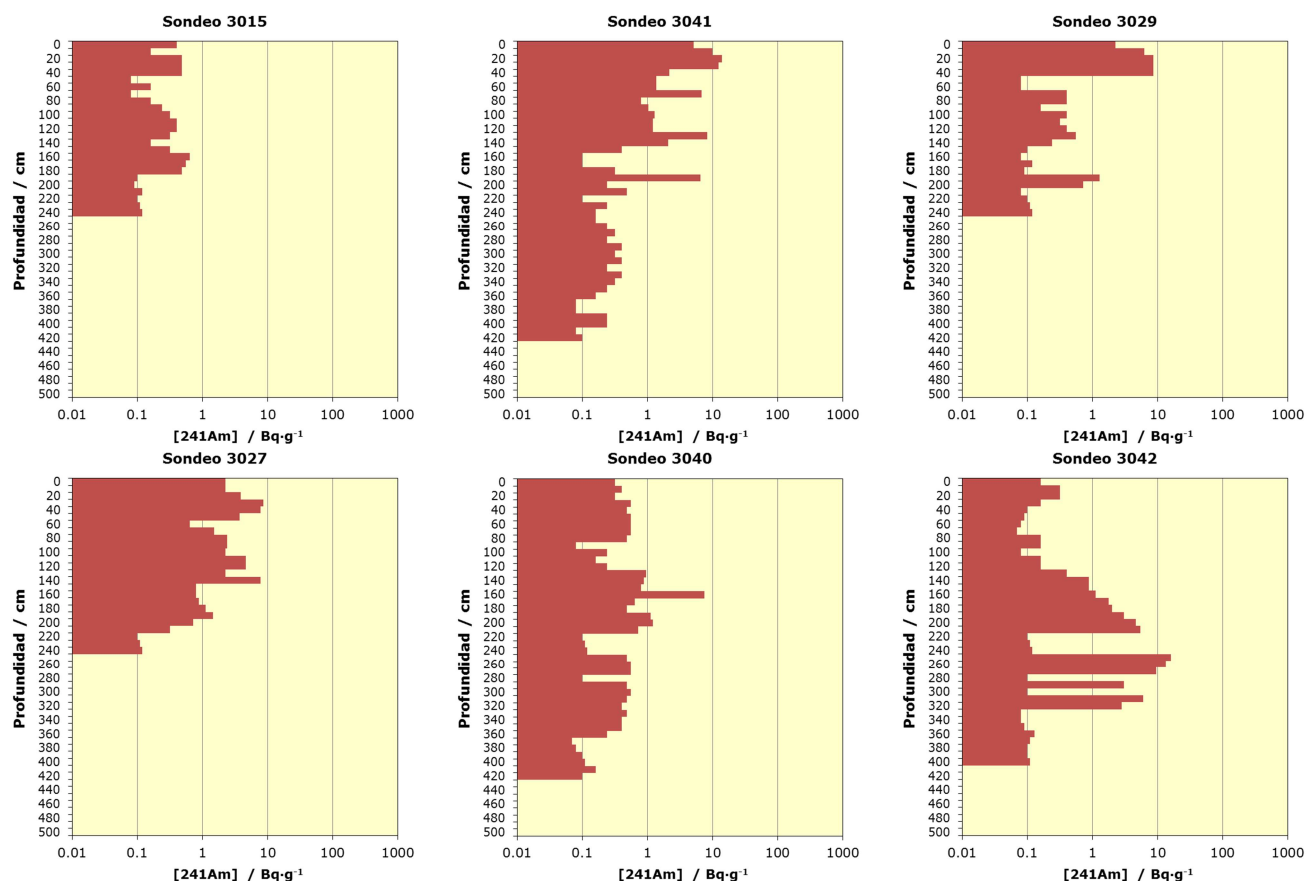


Figura 87: Distribución de la $[^{241}\text{Am}]$ en función de la profundidad obtenidos a partir de las medidas efectuadas con Mini-FIDLER sobre los sondeos efectuados en la zona 3. La localización de cada sondeo se muestra en la Figura 86.

A continuación se describen los sondeos de la zona 3 y las conclusiones obtenidas

- En el sondeo 3015 no se aprecia ningún tramo con $[^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ hasta alcanzar los 240 cm de profundidad y, por tanto, puede considerarse como representativo del terreno no afectado.
- A unos 20 m hacia el E, el sondeo 3041 muestra $[^{241}\text{Am}]$ entre 1 y $10 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en varios tramos estrechos que van desde la superficie hasta los 200 cm de profundidad. Ello se explica de nuevo por los trabajos de las acciones de remedio emprendidas en 1966 y posiblemente la mezcla de tierra en las labores agrícolas posteriores.
- Los sondeos 3027 y 3029 reiteran el patrón descrito en el párrafo anterior e ilustran la extensión subterránea que es previsible alcance la contaminación.
- El sondeo 3040 se perforó sobre unos 2 m de tierra de relleno que se añadió para nivelar el terreno y poder extender los edificios agrícolas que ya existían en 1966. Los resultados efectivamente muestran $[^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en toda la profundidad excepto en 160-170 cm donde el nivel es próximo a $10 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. Ello llevó a efectuar sondeos incluso dentro del edificio para alcanzar el suelo original
- El sondeo 3042 se practicó dentro de la edificación existente que se construyó sobre el material de relleno. En el perfil se aprecia claramente que a partir de 160 cm de profundidad la $[^{241}\text{Am}]$ aumenta notablemente e incluso $[^{241}\text{Am}] > 10 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en una estructura en capas similar a la del sondeo 3041.

Ello lleva a la conclusión de que el suelo en el que está apoyado el edificio muestra una contaminación importante, aunque con más de 2 m de material de relleno no suponga ningún riesgo radiológico para los usos que se han dado a dicha construcción.

Es importante remarcar que dada la orografía del terreno en la zona 6 resultó imposible acceder con maquinaria para extraer los testigos en las condiciones anteriores. En su lugar se extrajeron muestras inalteradas en 20 puntos del terreno entre 0 y 60 cm de profundidad cuyos resultados se muestran en la Figura 88 superpuestos al mapa de áreas obtenido con las medidas dinámicas. Para visualizar los resultados de las muestras en cada punto se emplean círculos concéntricos de modo que el círculo exterior corresponde al tramo de profundidad 0 - 20 cm, el intermedio a 20 - 40 cm y el interior a 40 - 60 cm.

Las medidas realizadas en todas las muestras extraídas a más de 20 cm de profundidad fueron $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, y cinco de las muestras superficiales sí presentaron valores superiores e incluso $[^{241}\text{Am}] > 10 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en dos puntos, lo que es coherente con los resultados de la caracterización radiológica del suelo superficial. Se puede concluir, por tanto, que la contaminación que aún persiste en la zona 6 se encuentra únicamente en el suelo superficial (0 - 15 cm), lo que se debe a que este terreno ha permanecido prácticamente inalterado desde el momento del accidente, sin más usos que la caza y el pastoreo.

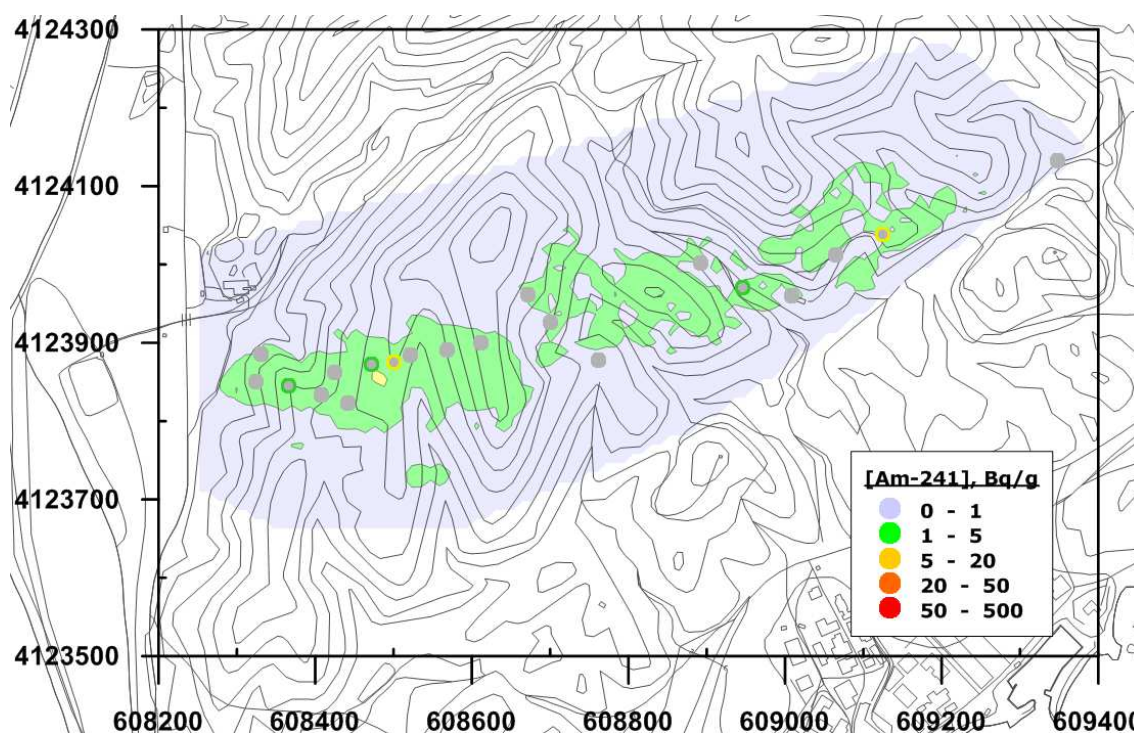


Figura 88: Resultados de los análisis con HP Ge de las muestras obtenidas de los testigos de los sondeos efectuados en la zona 3 agrupados en diversos tramos de profundidad.

Para visualizar y evaluar los volúmenes afectados según la $[^{241}\text{Am}]$ se emplea el programa Voxler [144], que permite la visualización tridimensional y realizar operaciones cuantitativas de cálculo de áreas y volúmenes.

El proceso consiste en modelizar el volumen con una geometría simple (ortopedro) y diseñando una malla basada en una celda unitaria que define el volumen mínimo que se pretende resolver, que en esta memoria ha sido inferior a 1 m^3 . Seguidamente se introducen los resultados de los sondeos como cilindros verticales en su posición geográfica (latitud y longitud) y con la estimación de la ^{241}Am obtenida a partir de la medida directa sobre los sondeos con Mini-FIDLER, que aporta 7 700 datos trazables a las medidas de las muestras extraídas de los mismos con HP Ge. A continuación se decide el modo de relación entre los resultados experimentales y que influyen de manera decisiva en el modelo, ya que determinan los métodos de interpolación y extrapolación. En esta memoria se considera una geometría isótropa (sin direcciones preferentes), con una interacción entre los resultados inversa al cuadrado de la distancia en un radio de 5 m, que se seleccionó a partir del espaciado medio entre los sondeos. Ello conduce a un modelo tridimensional de la contaminación conservador que sobrestima aceptablemente el volumen afectado y que evita subestimaciones o sobrestimaciones importantes como se muestra en la Figura 89.

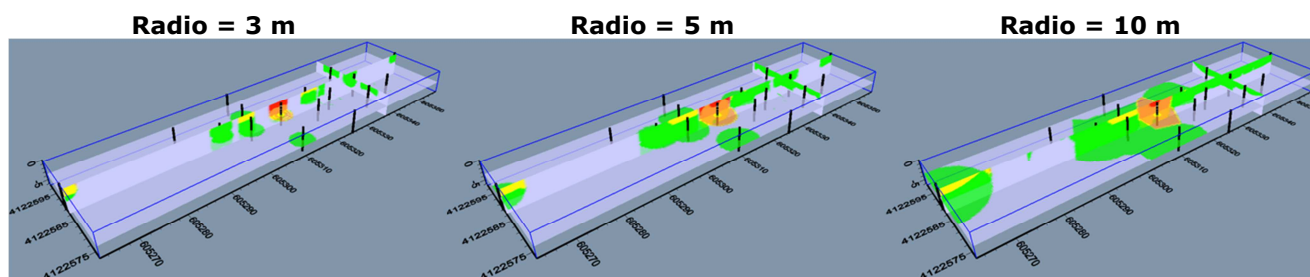


Figura 89: Influencia del radio de interacción entre los resultados experimentales en el modelo tridimensional.

Como ejemplo de estos cálculos, la Figura 90 presenta el modelo obtenido para la trinchera A, en la que se perforaron 16 sondeos en un área de $100 \times 25 \text{ m}^2$ y en algunos casos hasta 5 m de profundidad. En ella se muestra la localización de los sondeos, las secciones longitudinal y transversal, y una secuencia de secciones en el plano horizontal para distintas profundidades.

La Figura 90 se centra en el sondeo 2058, cuyo perfil en profundidad y valores de ^{241}Am se mostraron y discutieron en la Figura 85. Los sondeos que le rodean también muestran ese tipo de comportamiento en las medidas, lo que indica una continuidad en el espacio de la contaminación, que puede considerarse que alcanza a todos los sondeos excepto al que está situado al O y que, en principio, el origen de esa contaminación no es la trinchera.

Modelos similares al descrito con anterioridad se desarrollaron para la trinchera B, la zona 2 (excluyendo las trincheras) y la zona 3. Como ya se comentó con anterioridad, en la zona 6 la contaminación permanece en el suelo superficial, cuya superficie afectada ya se caracterizó en el apartado 3.3.2.

Una vez caracterizados los sondeos y determinados los modelos es posible determinar o estimar un volumen de suelo contaminado. En la Tabla XXVIII se recopilan los resultados cuantitativos de la estimación de los volúmenes afectados según la ^{241}Am . Es importante remarcar que el modelo de cálculo empleado incluye el suelo superficial.

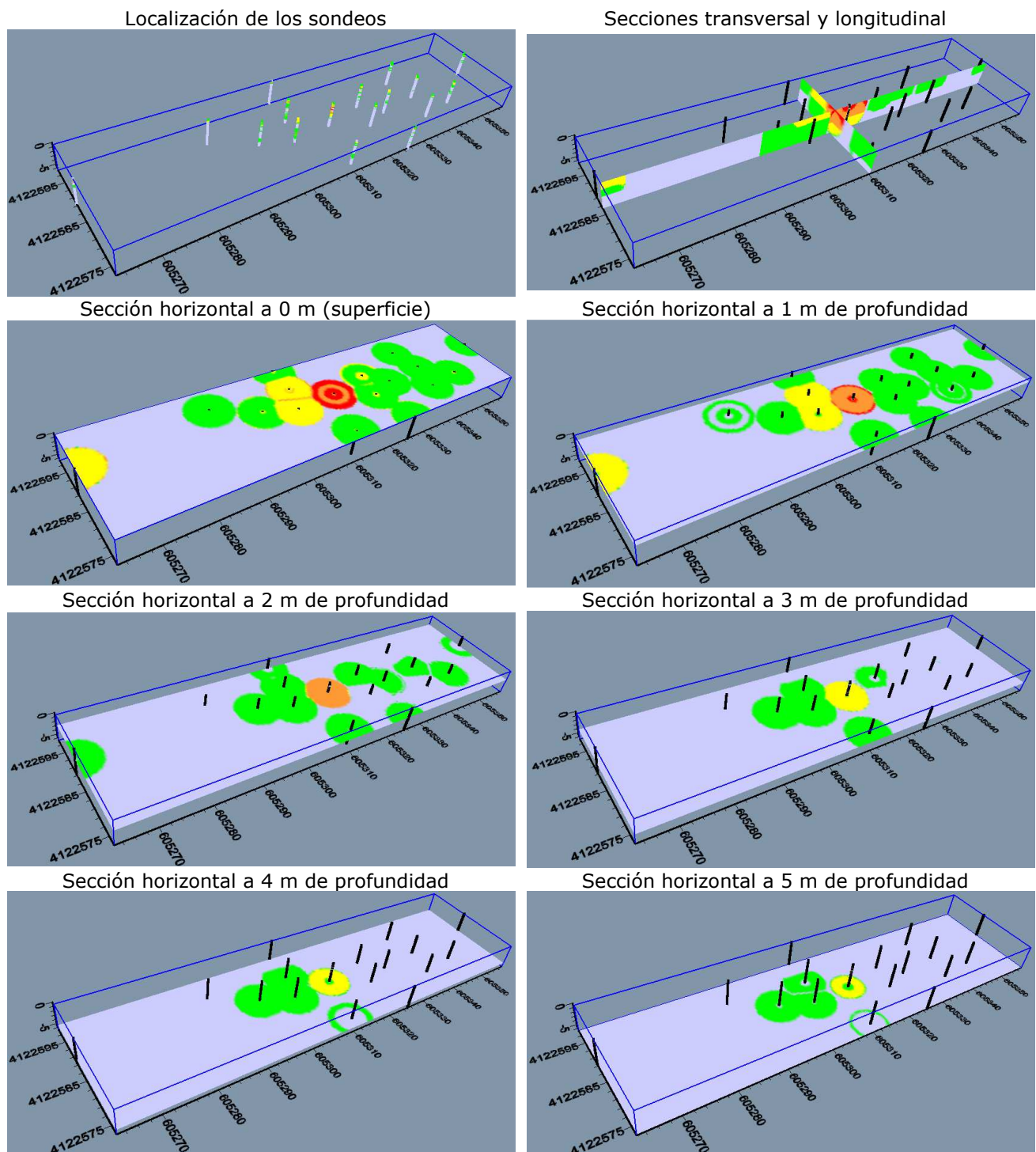


Figura 90: Influencia del radio de interacción entre los resultados experimentales en el modelo tridimensional. Los colores indican la $[^{241}\text{Am}]$ con el código empleado en el resto de figuras.

Tabla XXVIII: Evaluación del volumen de tierras contaminadas en el subsuelo (0.2 – 6 m) de Palomares a partir de los sondeos practicados en las zonas 2, 3 y 6.

Zonas	Volumen afectado según la [²⁴¹ Am] / m ³			
	1-5 Bq·g ⁻¹	5-20 Bq·g ⁻¹	20-50 Bq·g ⁻¹	>50 Bq·g ⁻¹
Zona 2 Norte	254	4	0	0
Trinchera A (Zona 2 Sur)	1963	480	213	41
Trinchera B (Zona 2 Sur)	735	340	1	0
Resto de la zona 2 Sur	8902	2455	139	41
Zona 3	1594	39	0	0
Total	13448	3318	353	41

3.5 Análisis de los resultados de la caracterización radiológica

A partir de la caracterización radiológica del suelo superficial (0 – 15 cm) y del subsuelo (0 – 5 m) presentada en esta memoria y teniendo en cuenta los criterios de restricción de uso establecidos por el CSN (1 y 5 Bq·g⁻¹), es posible evaluar los volúmenes de tierra contaminada para cada una de las zonas como se muestra en la Tabla XXIX, que se han calculado de acuerdo a las siguientes consideraciones:

- El volumen de suelo superficial (0 - 15 cm) se calcula a partir de las áreas indicadas en la Tabla XXIV correspondientes a la campaña intensiva de medidas dinámicas, que proporciona un gran número de datos experimentales trazables a medidas espectrométricas estáticas in situ y a la medida de muestras inalteradas con FIDLER y HP Ge. De modo conservador se considera que el espesor afectado es de 15 cm.
- El volumen del subsuelo (0.15 - 5 m) se determina considerando modelos tridimensionales para cada zona como se describieron en el apartado 3.4 pero excluyendo los resultados en los primeros 15 cm de suelo.

A partir de los resultados obtenidos, en la Figura 91 se representan gráficamente los resultados globales y su distribución por zonas y profundidad. Como se puede observar, dichos resultados indican que más de 38 000 m³ de tierras presentan una [²⁴¹Am] >1 Bq·g⁻¹ y que de ellos casi 10 000 m³ (26 %) superan el valor de 5 Bq·g⁻¹. Es importante indicar que el 62 % del volumen de tierras contaminadas es suelo superficial, unos 15 000 m³ (que están en el subsuelo por debajo de los 15 cm iniciales desde la superficie), alcanzando en algunos casos la contaminación varios metros de profundidad.

Tabla XXIX Evaluación del volumen de tierras contaminadas en Palomares entre 0 y 5 m de profundidad para cada uno de los criterios de restricción de uso establecidos por el CSN.

	Volumen de suelo contaminado / m ³									
	Zona 2 Norte		Zona 2 Sur		Zona 3		Zona 6		Total	
[²⁴¹ Am] / Bq·g ⁻¹	1-5	> 5	1-5	> 5	1-5	> 5	1-5	> 5	1-5	> 5
Suelo superficial (0 - 15 cm)	1 439	624	3 585	5 736	671	290	11 465	45	17 159	6 695
Subsuelo (0.15-5 m)	126	0	10 080	3 119	1 219	34	0	0	11 425	3 153
TOTAL	1 565	624	13 665	8 855	1 890	324	11 465	45	28 584	9 848

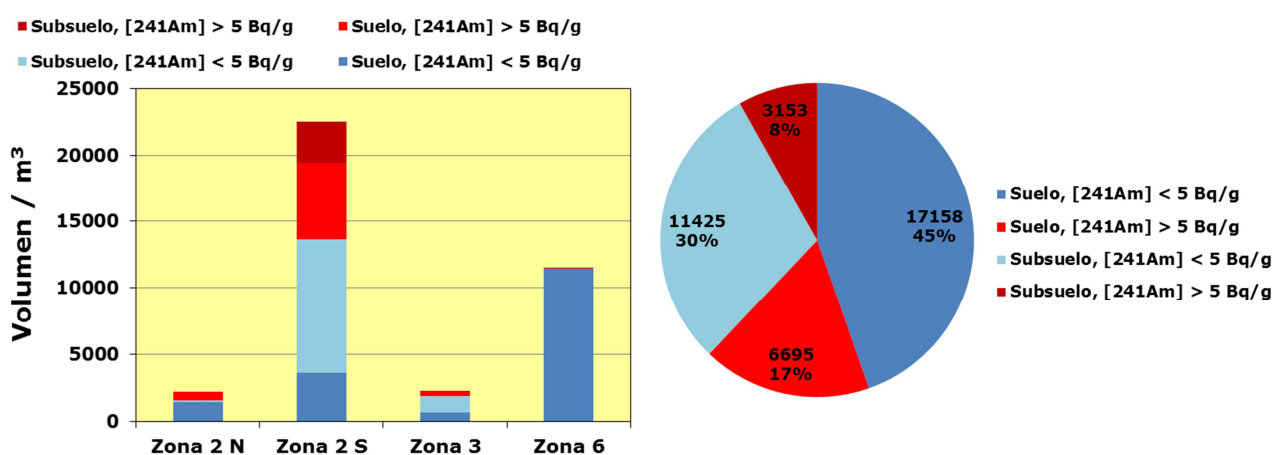


Figura 91: Estimación de los volúmenes de tierra de Palomares contaminados por zonas, profundidad y nivel de [²⁴¹Am].

La distribución de los volúmenes contaminados y de la actividad total de ²⁴¹Am por profundidad en cada zona se presentan en la Tabla XXX y se comparan gráficamente en la Figura 92 donde se aprecia que la Zona 2 S es la más afectada en volumen y más aún en actividad, especialmente en el subsuelo.

- Zona 2 N (~ 3 ha): Casi 2 200 m³ contaminados, y de ellos el 94 % están en el suelo superficial, de los que 620 m³ tienen una [²⁴¹Am] > 5 Bq·g⁻¹.
- Zona 2 S (~ 5 ha): Contiene más de 22 500 m³ contaminados y 150 GBq de ²⁴¹Am. De ellos 9 300 m³ están en el subsuelo (4 000 m³ en las trincheras A y B). En esta zona se encuentran más de 8 800 m³ de tierras contaminadas con [²⁴¹Am] > 5 Bq·g⁻¹, que suponen el 90 % del volumen contaminado en ese intervalo.
- Zona 3 (~ 0.7 ha): De los 2 200 m³ contaminados, el 85 % presenta [²⁴¹Am] < 5 Bq·g⁻¹. Más de la mitad del volumen (1 250 m³) se encuentra en el subsuelo.
- Zona 6 (~ 17 ha): Más de 11 500 m³ contaminados, todos ellos en el suelo superficial y con [²⁴¹Am] < 5 Bq·g⁻¹ (excepto en 45 m³). Esto explica que sea la zona 2 S la que más actividad de ²⁴¹Am contiene en el suelo superficial.

Tabla XXX Estimación del volumen y de la actividad total de ²⁴¹Am de las tierras contaminadas con [²⁴¹Am] > 1 Bq·g⁻¹ en Palomares.

	Volumen de suelo contaminado / m ³				
	Zona 2 Norte	Zona 2 Sur	Zona 3	Zona 6	Total
Suelo superficial (0 - 15 cm)	2063	9321	960	11510	23853
Subsuelo (0.15 - 5 m)	126	13199	1253	0	14578
TOTAL	2189	22520	2213	11510	38431
	Actividad total de ²⁴¹ Am / GBq				
	Zona 2 Norte	Zona 2 Sur	Zona 3	Zona 6	Total
Suelo superficial (0 - 15 cm)	6.83	60.29	3.52	18.60	89.24
Subsuelo (0.15 - 5 m)	8.63	91.20	3.52	0.00	103.35
TOTAL	15.47	151.49	7.04	18.60	192.60

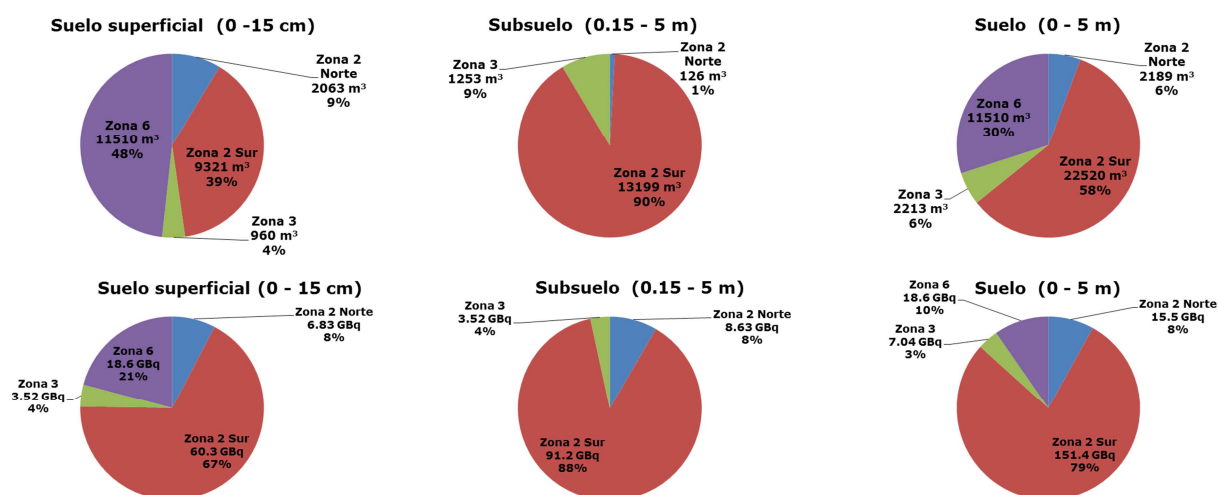


Figura 92: Distribución de los volúmenes de suelos contaminados (fila superior) y de la actividad total de ²⁴¹Am (fila inferior) por zonas para el suelo superficial (izquierda), el subsuelo (centro) y la suma de ambos (derecha).

La Tabla XXXI y la Figura 93 describen con más detalle las parcelas afectadas según el nivel de contaminación y su distribución en profundidad. En particular, se menciona el uso y las alteraciones que cada parcela sufrió en las acciones de remedio de 1966 y las intervenciones posteriores para su uso por el hombre. El propósito de esta información es servir de punto de partida para la toma de decisiones respecto a las acciones posteriores sobre estos terrenos.

Tabla XXXI: Descripción de las parcelas contaminadas por el accidente de 1966.

	Parcela	S / m ²	Descripción
Zona 2 Sur	1 Impacto 2	12 000	Fue muy alterada en 1966 y después por los usos agrícolas que supusieron el movimiento de tierras y la mezcla con otros materiales no contaminados. Las contaminaciones evaluadas son importantes tanto en la superficie como en profundidad.
	2 Trinchera A	2 100	Se practicó en 1966 para enterrar materiales provenientes de las zonas 2 y 3. Posteriormente se decidió abandonar esta solución y enviar el material contaminado a EEUU. En el interior de la trinchera se encuentran materiales altamente contaminados en profundidades de hasta 5 m.
	3 Trinchera B	4 400	Situada en el valle inmediato al O de la Zona 2, parece ser que esta trinchera se practicó en 1966 para facilitar la carga de contenedores con material contaminado para su transporte terrestre en camiones. Al finalizar esta tarea, la trinchera se rellenó con materiales contaminados que pueden ser tierras, cenizas u otros objetos. La profundidad contaminada alcanza hasta 3 m
	4 Colinas	10 600	Incluye también el vestigio de la colina que existió antes de construir la balsa E. No fueron limpiadas en 1966 y desde entonces no han tenido ningún uso ni han sufrido modificación. Presentan contaminaciones importantes en los primeros 15 cm del suelo.
	5 Cabecera	12 000	Fue alterada con fines agrícolas incluso con la adición de material de relleno sin contaminar. Presenta contaminación notable en el suelo superficial y en algunos sondeos se ha detectado contaminación inicial remanente en profundidades comprendidas entre 1 y 2.5 m.
	6 Escorrentía	24 200	Situada en la vertiente natural del valle, la ladera de una colina se desmontó para aumentar la superficie y el resto está aterrizado para su uso agrícola. Presenta contaminación en los primeros 15 cm de suelo proveniente del arrastre por el agua
Zona 2 Norte	7 Colina	10 800	Esta colina no fue limpiada en 1966 y desde entonces no ha tenido ningún uso ni ha sufrido modificación y presenta contaminaciones importantes en los primeros 15 cm del suelo.
	8 Terrazas	19 000	Terrenos que han sido modificados para su uso agrícola con los correspondientes movimientos y mezclas de tierras. Presentan un cierto nivel de contaminación en los primeros 15 cm de suelo.
Zona 3	9 Terrazas	6 100	Terrenos remediados en 1966 modificados posteriormente por el uso agrícola con los correspondientes movimientos y mezclas de tierras. Presentan contaminación hasta 1 m de profundidad.
	10 Impacto 3	2 000	Alterada durante las acciones de remedio de 1966, buena parte de ella se encuentra bajo el material de relleno que sirvió para edificar una construcción encima. Presenta contaminación importante hasta varios m de profundidad.
Zona 6	11 Ladera O	50 000	Situada en la vertiente occidental de Sierra Almagrera, consiste en una ladera con una pendiente pronunciada limitada en su punto más bajo por un invernadero que está en explotación. En ella se han detectado numerosos puntos con niveles elevados de contaminación en el suelo superficial.
	12 Cumbres E	39 000	Localizada en las cumbres de varias colinas de Sierra Almagrera, presenta niveles moderados de contaminación bastante dispersa en el suelo superficial.

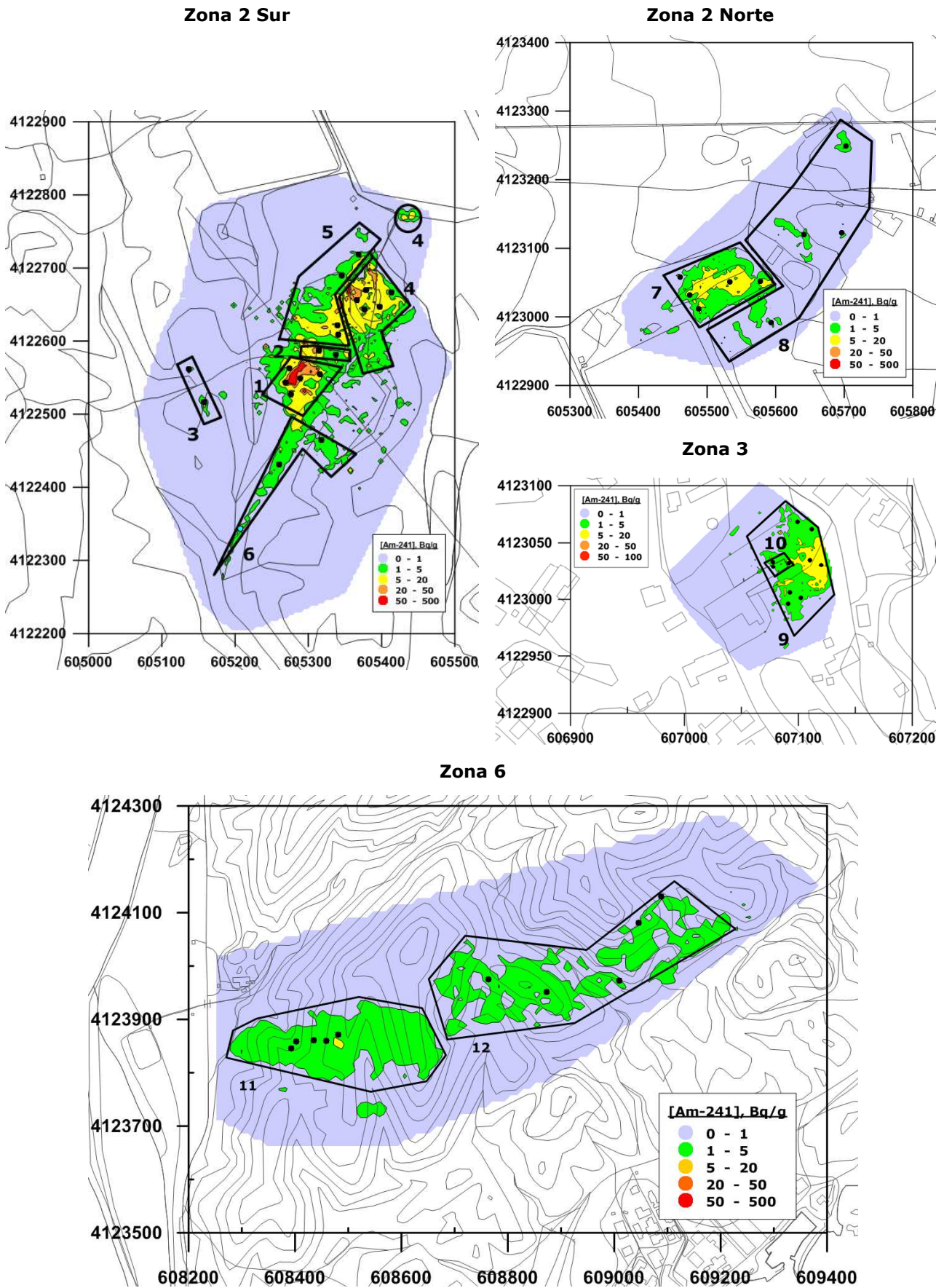


Figura 93. Definición de las parcelas según su nivel de contaminación y su distribución en profundidad. Los círculos negros indican la posición de las muestras empleadas en el estudio de granulometría (apartado 3.6).

La actividad total de ^{241}Am mostrada en la Tabla XXX se calculó a partir de las medianas obtenidas en cada conjunto de datos, ya que las distribuciones de ^{241}Am no se pueden considerar normales y se optó por emplear dicho estadístico como estimador de la tendencia central y los cuartiles 1º y 3º para estimar la dispersión de los resultados, que se detallan en la Tabla XXXII.

Tabla XXXII: Medianas y cuartiles (primero, tercero) de la ^{241}Am en cada zona en función de la profundidad y los intervalos de restricción de uso establecidos por el CSN.

	Mediana y cuartiles de ^{241}Am / $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$							
	Zona 2 Norte		Zona 2 Sur		Zona 3		Zona 6	
^{241}Am / $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	1 -5	> 5	1- 5	> 5	1- 5	> 5	1- 5	> 5
Suelo superficial (0-15 cm)	1.55 1Q: 1.14 3Q: 3.00	7.38 1Q: 6.13 3Q: 9.90	2.05 1Q: 1.43 3Q: 3.14	9.23 1Q: 6.80 3Q: 15.2	2.52 1Q: 1.73 3Q: 3.59	6.31 1Q: 5.55 3Q: 7.50	1.60 1Q: 1.23 3Q: 2.34	5.68 1Q: 5.27 3Q: 6.55
Subsuelo (0.15-5 m)	1.36 1Q: 1.12 3Q: 1.68	10.7 1Q: 8.28 3Q: 12.5	1.44 1Q: 1.12 3Q: 2.24	15.0 1Q: 8.80 3Q: 29.8	1.76 1Q: 1.28 3Q: 2.84	8.08 1Q: 6.84 3Q: 11.6	0.0	0.0

A partir de los valores mostrados en la Tabla XXXII se determinó la mediana y la dispersión intercuartil la actividad total de ^{241}Am (determinada experimentalmente a través de las medidas de actividad y la estimación de los volúmenes contaminados), y a partir de ella se calculó la contaminación en términos de ^{239}Pu , que es el radionucleido mayoritario en la misma en términos de masa:

- La actividad total de ^{241}Am en cada zona se calcula partiendo de la hipótesis de una densidad del suelo de $1.4 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ (Figura 57) que se multiplica por el valor de la ^{241}Am y por el volumen correspondiente según la profundidad y la zona considerados, sumando las actividades de suelo superficial y subsuelo de cada zona.
- La actividad total de ^{239}Pu en cada zona se determina empleando la relación $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu} = 0.3$ (Tabla IX) sobre las actividades totales de ^{241}Am estimadas en el punto anterior.
- La masa total de ^{239}Pu en cada zona se determina considerando el valor de actividad específica del Pu (es decir, $2.3\cdot 10^9 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, Tabla I).

Los resultados de los cálculos obtenidos siguiendo esta metodología se muestran en la Tabla XXXIII. Los valores obtenidos indican que en los suelos de Palomares permanece una actividad total entre 0.4 y 1.1 TBq de ^{239}Pu , que suponen entre 190 y 485 g de este último isótopo, de los cuales entre 160 y 430 g corresponden a la zona 2 (N y S).

Aunque se desconoce cuál era la masa de Pu inicial que pudieran contener dichas bombas, a partir de la revisión del estado del arte se estima que podría haber sido de entre 5 y 10 kg. Esto significa que el inventario de Pu identificado en esta memoria supone como máximo el 10 % de la masa total de Pu contenida en una de las bombas.

Tabla XXXIII: Estimación de las actividades de ^{241}Am y ^{239}Pu y de la masa de ^{239}Pu en las tierras contaminadas en Palomares entre 0 y 5 m de profundidad.

	Actividad ^{241}Am / GBq				
	Zona 2 Norte	Zona 2 Sur	Zona 3	Zona 6	Total
Mediana	15.47	151.49	7.04	18.60	192.60
Cuartil 1	12.24	98.62	5.59	14.34	130.80
Cuartil 3	20.71	277.41	9.84	27.12	335.08
	Actividad ^{239}Pu / GBq				
	Zona 2 Norte	Zona 2 Sur	Zona 3	Zona 6	Total
Mediana	51.56	504.98	23.45	62.00	641.99
Cuartil 1	40.81	328.74	18.64	47.79	435.98
Cuartil 3	69.03	924.69	32.80	90.41	1116.93
	Masa ^{239}Pu / g				
	Zona 2 Norte	Zona 2 Sur	Zona 3	Zona 6	Total
Mediana	22.42	219.56	10.20	26.95	279.13
Cuartil 1	17.74	142.93	8.10	20.78	189.56
Cuartil 3	30.01	402.04	14.26	39.31	485.62

3.6 Distribución de la masa y actividad de ^{241}Am en función del tamaño de partícula

Una vez identificada la contaminación tanto en niveles de radiactividad como en su distribución espacial, la siguiente fase consistió en caracterizar cómo las partículas radiactivas (que en teoría deberían ser del orden de pocos μm) se encuentran ligadas con los componentes de las tierras que por su tamaño se denominan arcillas ($< 2 \mu\text{m}$), limos ($2 - 60 \mu\text{m}$), arenas ($60 \mu\text{m} - 2 \text{mm}$) o gravas ($> 2 \text{mm}$). Para ello se efectuó un estudio de caracterización granulométrica [106] que permita determinar cuáles son las fracciones de masa y que actividad poseen en función del tamaño de partícula. Para ello se empleó un tamizado en seco (descrito en el apartado 2.6).

Para la realización de dicho estudio se seleccionaron 70 muestras inalteradas (48 de suelo superficial 0 - 15 cm y 22 de testigos de los sondeos con profundidades entre 20 y 420 cm) provenientes de las 11 parcelas afectadas cuya localización se muestra con círculos negros en la Figura 93. El tamizado de las muestras permitió clasificar por tamaños las muestras iniciales resultando aproximadamente 900 muestras almacenadas en geometría de cápsula Petri de 47 mm de diámetro y 6 mm de espesor que fueron medidas cada una de ellas por ambas bases, lo que ha supuesto más de 1 800 medidas con los detectores de HP Ge.

En la Figura 94 se muestra el contenido en humedad de las muestras inalteradas determinado por diferencia relativa entre los pesos de las mismas antes y después de someterlas al proceso de secado y disgregación de los agregados en función de la zona de origen de las muestras. Resaltar que sólo dos de las muestras superficiales presentaban contenidos en humedad superiores al 15 %, siendo el valor máximo determinado del 23 %. En contraste, sólo una muestra de sondeos presenta una humedad superior al 10 % cuando el resto presenta humedades en torno al 5 % e incluso varias de ellas muy próximas al 0 %.

El secado y la disgregación de las muestras inalteradas reducen la compactación que presentan los terrenos originales, causando un incremento de volumen (porcentaje de esponjamiento [145]) que, como se muestra en la Figura 95, varió entre el 1 % - 85 %, incluso en muestras de la misma procedencia. El esponjamiento debe ser tenido en cuenta en la toma de decisiones de la intervención, pues el volumen inicial estimado puede aumentar hasta en más de un factor 2 el volumen de tierras contaminadas una vez extraídas.

La eliminación de la humedad y el efecto de esponjamiento producen una disminución importante de la densidad aparente en las muestras fraccionadas en comparación con lo que mostraba la correspondiente muestra inalterada, tal y como se aprecia en la Figura 96. Además, el intervalo de variación de la densidad aparente de las muestras fraccionadas es más reducido ($0.75 - 1.45 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$), lo que implica que la diferencia en la corrección por densidad aparente en la estimación de la actividad fue inferior al 20 %.

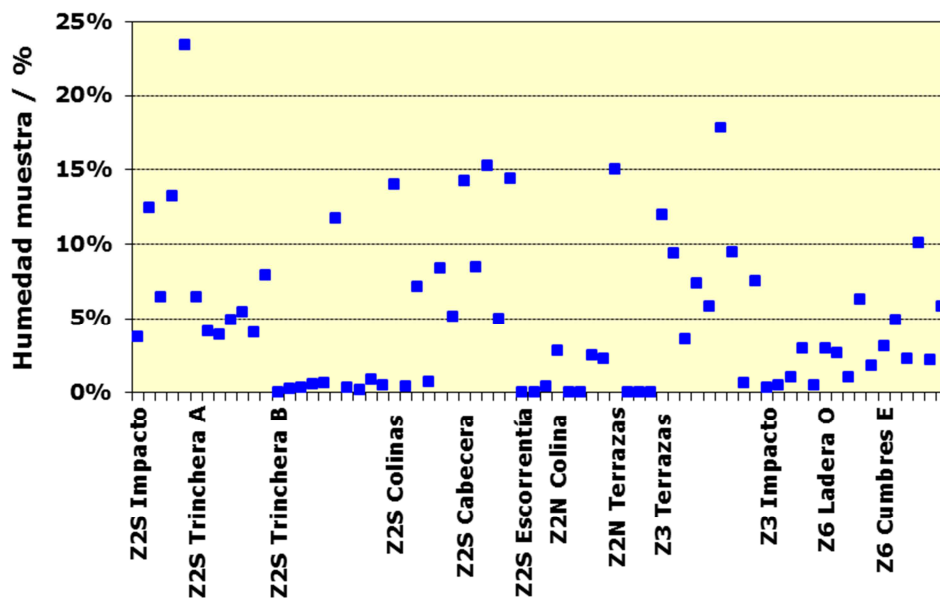


Figura 94: Contenido en humedad en las muestras inalteradas.

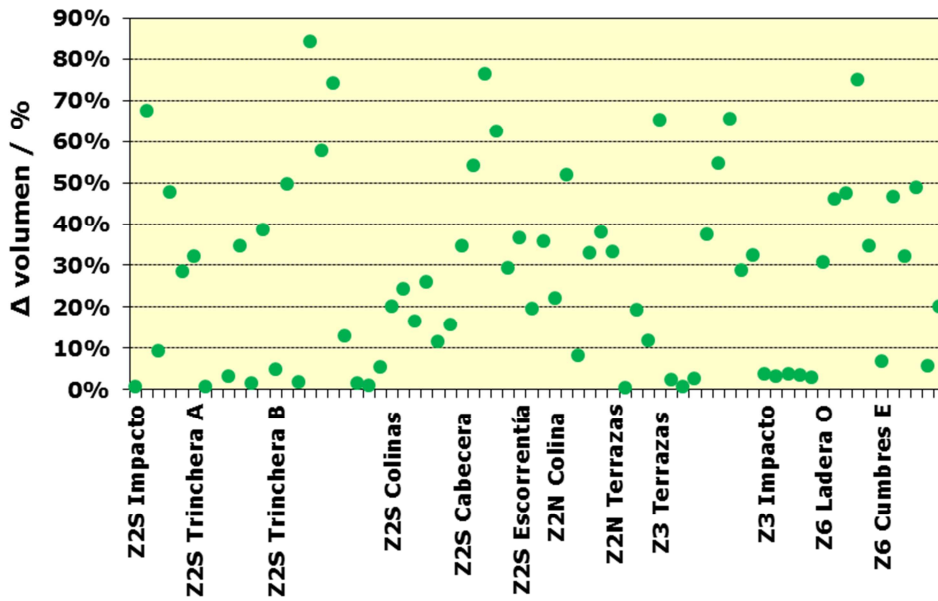


Figura 95: Incremento de volumen en las muestras fraccionadas respecto a su estado inalterado.

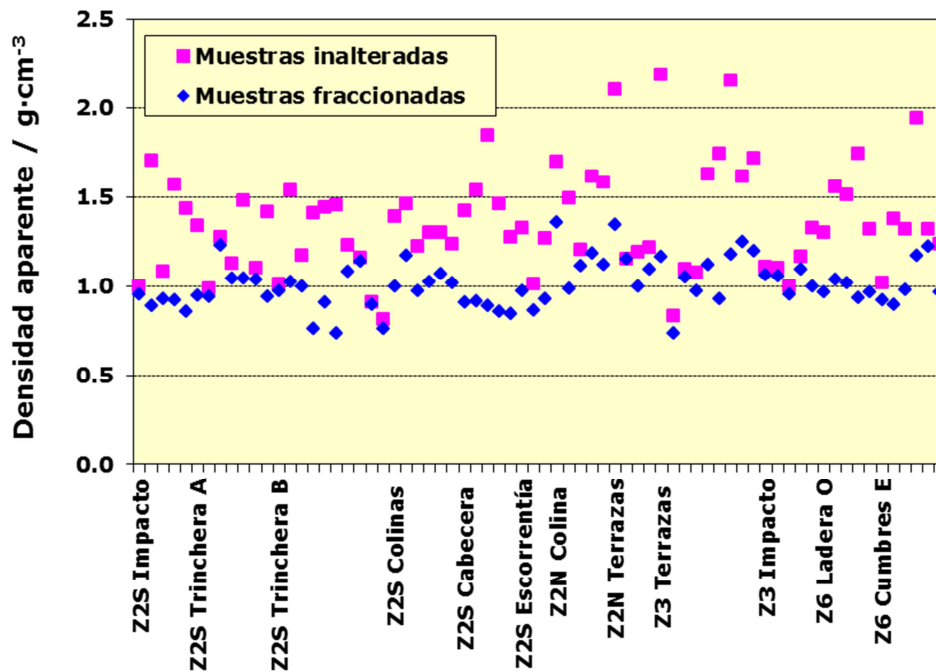


Figura 96: Comparación de las densidades de las muestras inalteradas y su fraccionamiento

En la separación granulométrica de cada muestra se obtuvo al menos una porción correspondiente a cada fracción granulométrica, obteniéndose en alguna muestra hasta 10 cápsulas Petri del tamaño más frecuente (< 40 μm). La Figura 97 muestra los resultados representativos de [²⁴¹Am] en función de la distribución de tamaño de grano obtenidos en cada parcela. Al igual que en casos anteriores, para facilitar la comprensión del lector la escala del eje de abscisas permanece constante.

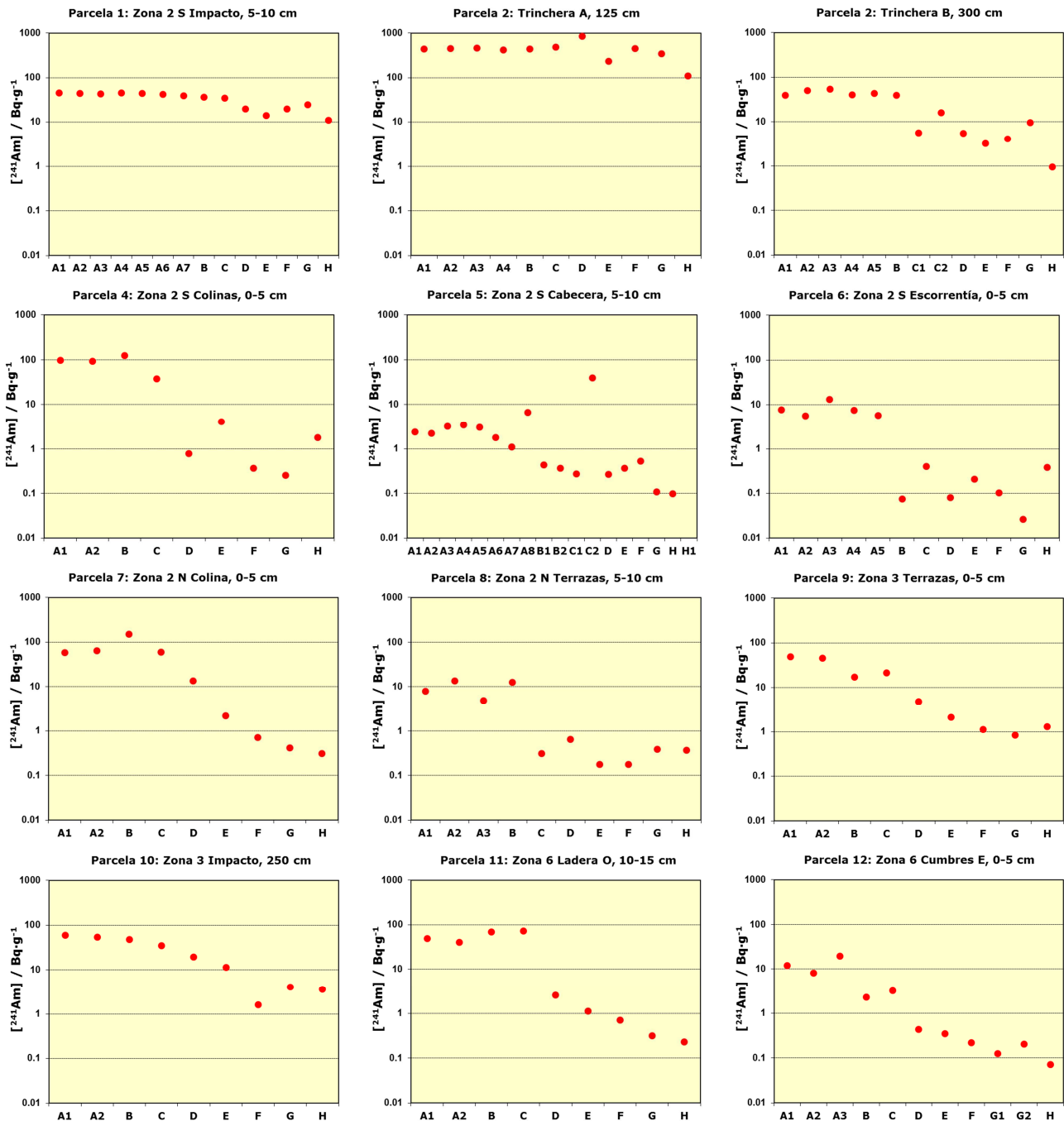


Figura 97: Resultados de ^{241}Am en las fracciones granulométricas de las muestras inalteradas procedentes de las parcelas afectadas en Palomares. El eje de abscisas indica las fracciones granulométricas de acuerdo al siguiente código: A: $< 40 \mu\text{m}$, B: $40\text{-}63 \mu\text{m}$, C: $63\text{-}125 \mu\text{m}$, D: $125\text{-}250 \mu\text{m}$, E: $250\text{-}500 \mu\text{m}$, F: $0.5\text{-}1 \text{ mm}$, G: $1\text{-}2 \text{ mm}$, H: $> 2 \text{ mm}$

De los resultados obtenidos en el estudio granulométrico y la evaluación de la actividad en cada una de las fracciones, se puede deducir que en general, para cada muestra la ^{241}Am obtenida en cada fracción correspondiente a un mismo tamaño de partícula es bastante uniforme, como se ilustra en las muestras de clase A ($< 40 \mu\text{m}$) de las parcelas 1 y 3 (ver Figura 97). Además, se constató que las partículas contaminantes se distribuyen homogéneamente en las diversas fracciones granulométricas, lo que se explica porque su tamaño es muy reducido con respecto a los componentes del suelo a los que se

adhieren formando agregados. Sin embargo en ocasiones como los de la parcela 5, se midió que una de las 8 muestras de clase A presenta una $[^{241}\text{Am}]$ que es casi 10 veces mayor que el resto, efecto que es aún más pronunciado al comparar las dos muestras de clase C (63 -125 μm). Ello puede indicar la presencia de partículas radiactivas de mayor tamaño en esas fracciones.

Otra utilidad de estos resultados además de la caracterización granulométrica de las partículas, es evaluar la posible aplicación de procesos de segregación que permitan reducir el volumen de los suelos contaminados mediante técnicas de tamizado. Técnicas puramente mecánicas que no implican la utilización de procesos de lavado o adición de reactivos químicos que conlleven el incremento en volumen de residuos como consecuencia de la generación de residuos secundarios.

Por ejemplo, si se parte de la hipótesis de estimar que los suelos excavados con actividad por debajo del criterio de restricción de uso parcial establecido por el CSN, es decir, $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, pueden ser considerados como no radiactivos (en la Figura 97 se aprecia que algunas de las parcelas son susceptibles de cumplir dicho criterio) en función de la distribución asociada al tamaño de partícula en cada uno de los terrenos se podría realizar un estudio de la viabilidad de los procesos de segregación en cada una de las parcelas, como a continuación se propone:

- Las parcelas 1, 9 y 10 próximas a los puntos de impacto de las bombas 2 y 3, así como las trincheras A y B (parcelas 2 y 3) muestran $[^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en todas las fracciones granulométricas, lo que descarta el tamizado mecánico. Estas parcelas son las que concentran más actividad de la contaminación aún existente.
- Parcelas como las colinas de la zona 2 (parcelas 4 y 7), la cabecera y escorrentía de la zona 2 S (parcelas 5 y 6), las terrazas de la zona 2 N (parcela 8) y las parcelas 11 y 12 de la zona 6, donde parece que es posible establecer un tamaño de partícula a partir del cual se cumpliría $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. Además, en estas parcelas la contaminación está, en general, en su mayoría en el suelo superficial.

Los resultados obtenidos de las distribuciones de la masa y de la actividad de ^{241}Am en función del tamaño de partícula para cada una de las parcelas sometidas a estudio se presentan en la Figura 98. En dicha figura las barras indican el valor medio determinado y las barras de error la desviación típica obtenida en las muestras procedentes de la misma parcela. Como se puede observar en la Figura 98, en todas las parcelas se observa que la actividad se concentra en las fracciones granulométricas de menor tamaño de partícula, siendo superior al 50 % en la fracción A (< 40 μm) y alcanzando casi el 90 % en la parcela 6 (Zona 2 S Escorrentía). En contraste, la distribución granulométrica es diversa, acumulándose en las partículas más pequeñas (como en el caso de la actividad) aunque sin valores tan elevados de abundancia (parcelas 1, 3, 5 y 6), cuasi uniformemente distribuida (parcelas 2, 8 y 9) de la masa y, finalmente, concentrándose en los mayores tamaños de partícula (parcelas 4, 7, 10, 11 y 12).

En las parcelas 1, 2 y 5 (ver Figura 98) donde existe una correlación directa entre las distribuciones de actividad y masa, la operación de tamizado en seco resultará ineficaz pues

no supondría una reducción diferencial de actividad respecto a la masa recuperada con $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. En las parcelas 4, 7, 8, 10 y 12 dicha correlación es inversa y por tanto se podría reducir la masa afectada hasta un factor 5 mediante el tamizado en seco [146] [147]. En el resto de las parcelas (3, 6, 9 y 11) la situación es intermedia y se estudia caso por caso.

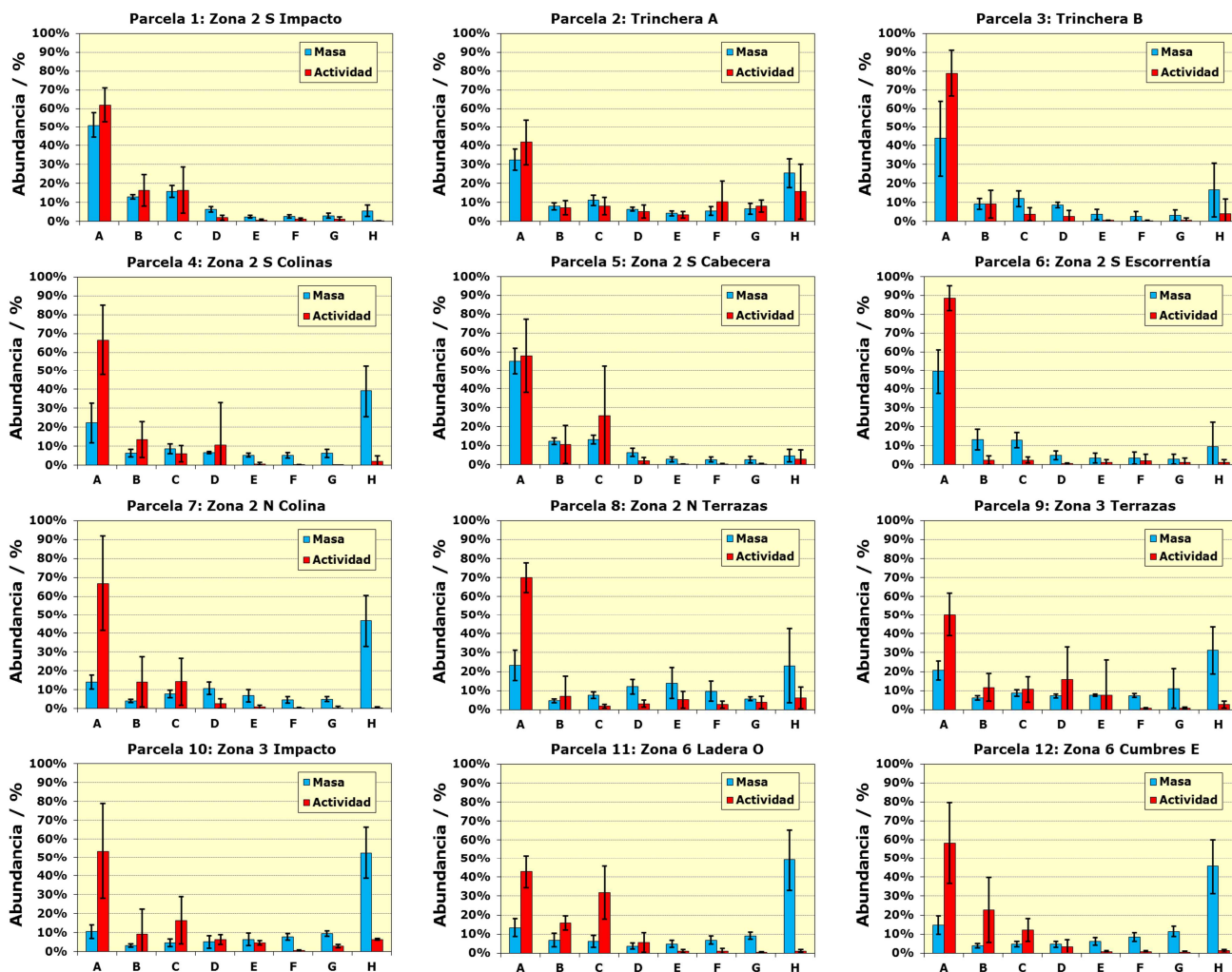


Figura 98: Distribuciones de la masa y de la actividad de ^{241}Am en las fracciones granulométricas de las muestras inalteradas procedentes de las parcelas afectadas en Palomares. El eje de abscisas indica las fracciones granulométricas de acuerdo al siguiente código: A: $< 40 \mu\text{m}$, B: $40\text{-}63 \mu\text{m}$, C: $63\text{-}125 \mu\text{m}$, D: $125\text{-}250 \mu\text{m}$, E: $250\text{-}500 \mu\text{m}$, F: $0.5\text{-}1 \text{ mm}$, G: $1\text{-}2 \text{ mm}$, H: $> 2 \text{ mm}$. Las barras de error indican la desviación típica de las muestras procesadas en cada parcela.

Para ayudar al estudio sistemático de la eficacia del tamizado en seco se puede definir un factor de reducción, el cual se calcula como el cociente del cuadrado de la abundancia de actividad entre la abundancia de masa para una misma fracción granulométrica. Este factor es tanto mayor cuanto mayor sea la abundancia de actividad y cuanto mayor sea su diferencia con respecto a la abundancia de masa. Además, cuando su valor es mayor que la unidad proporciona una estimación de la reducción en la masa que supondría el tamizado en seco. Tomando como base los valores mostrados en la Figura 98 y considerando el factor de reducción antes definido, los resultados obtenidos se muestran en la Figura 99. Dicha figura revela que simultáneamente los dos criterios que sirven para decidir si el tamizado en seco es eficaz son:

- la contaminación en la fracción mayoritaria en masa (en todos los casos fue la de mayor tamaño por lo que se le denomina gruesos) debe ser $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$
- el factor de reducción > 1 .

Gráficamente en Figura 98 estos valores se indican como una única línea continua que deberá ser superada por la barra correspondiente a cada muestra (y los símbolos deben estar por debajo de ella), ya que se ha hecho coincidir con $[^{241}\text{Am}] = 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. Se observa que el cumplimiento de ambas condiciones depende del criterio de separación de las partículas según su tamaño y que en algunas parcelas es posible conseguir $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ aumentando dicho tamaño, lo que disminuye el factor de reducción.

En el caso de que el criterio de separación sea de 40 μm , sólo 2 de las parcelas serían susceptibles de reducir el volumen mediante una operación de tamizado en seco, cuyo número aumenta hasta 7 si el criterio fuera de 500 μm aunque con menores factores de reducción.

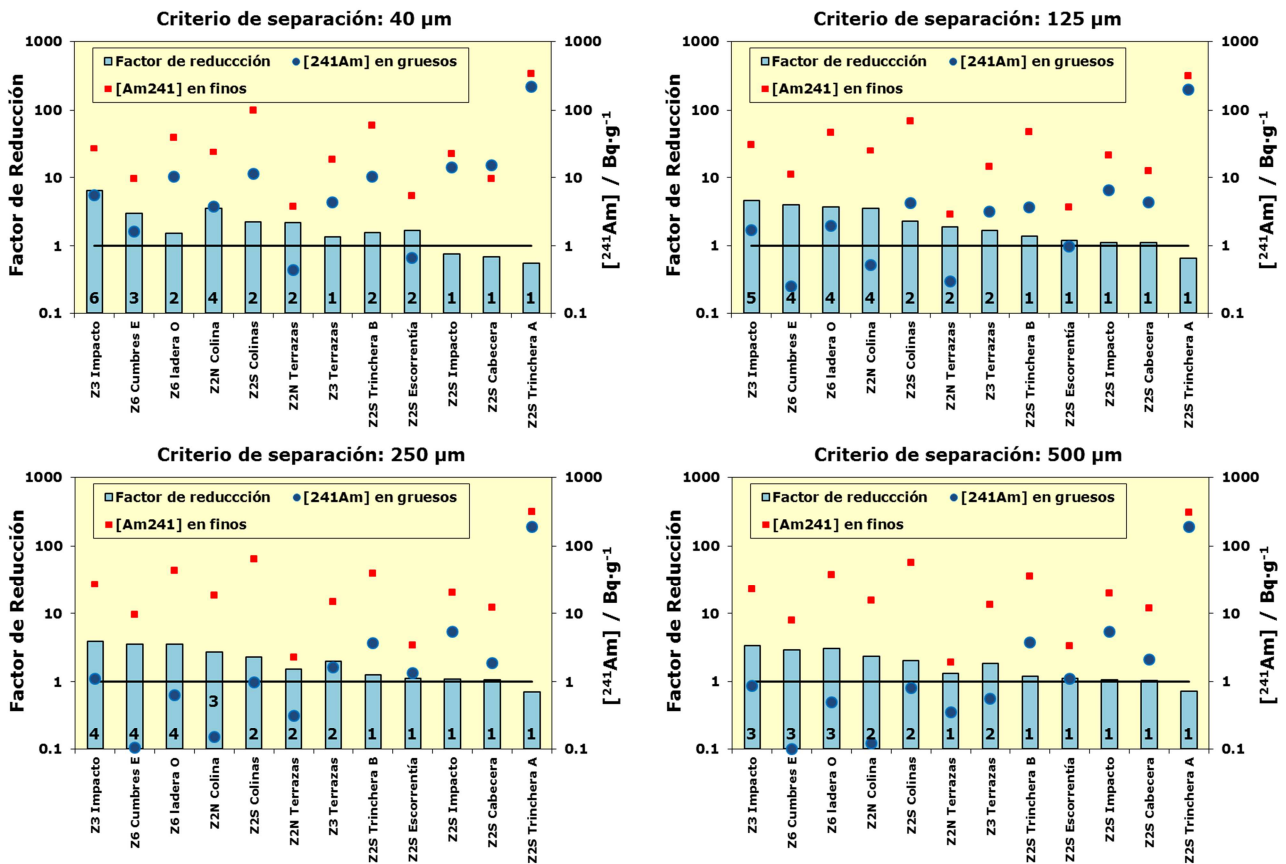


Figura 99: Factores de reducción de volumen y $[^{241}\text{Am}]$ en las fracciones separadas (finos y gruesos) según el criterio de separación por tamaño de partículas. En la base de las barras se muestra el valor redondeado del factor de reducción.

En la Tabla XXXIV se presenta a modo de resumen los resultados del estudio de granulometría que pueden servir de base para evaluar la eficacia del tamizado en seco en una eventual intervención en este área, y cuya descripción por zonas se describe a continuación:

- Zona 2 Norte: El porcentaje de esponjamiento varía entre el 15 % (terrazas) y en 30 % (colinas). El 80 % de la actividad se concentra en el 40 % de la masa con tamaño de partícula < 125 μm (factor de reducción entre 2 y 3) y en la fracción de gruesos se tiene que $[\text{}^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.
- Zona 2 Sur: El porcentaje de esponjamiento varía entre el 16 % (trinchera A) y el 51 % (cabecera). Las tierras contaminadas en las colinas se concentran en tamaños inferiores a 250 μm , pero en las parcelas 1, 2, 3 y 5 se tiene $[\text{}^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en la fracción de gruesos lo que hace ineficaz el tamizado en seco. En las parcela 4 (colinas) y 6 (escorrentía) se consiguen factores de reducción de 2 para tamaños de partícula < 250 μm y < 40 μm respectivamente, y en ambos casos se obtiene $[\text{}^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en la fracción de gruesos.
- Zona 3: El porcentaje de esponjamiento varía desde sólo el 3 % (impacto) hasta el 32 % (terrazas). El 85 % de la actividad se concentra en el 25 - 50 % de la masa con tamaño de partícula < 250 μm (factor de reducción entre 2 y 4) y en la fracción de gruesos se tiene que $[\text{}^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.
- Zona 6: El porcentaje de esponjamiento varía desde el 27 % (E) hasta el 40 % (O). El 90 - 95 % de la actividad se concentra en el 25 - 30 % de la masa con tamaño de partícula < 250 μm (factor de reducción entre 2 y 4) y en la fracción de gruesos se tiene que $[\text{}^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.

Tabla XXXIV: Resultados del estudio de granulometría para estudiar la eficacia del tamizado en seco en el tratamiento de las tierras contaminadas de Palomares.

	Parcela	Criterio de separación / μm	Fracción de actividad separada / %	$[\text{}^{241}\text{Am}]$ en gruesos / $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	Porcentaje de esponjamiento / %	Factor de reducción
Zona 2 Sur	1 Impacto 2	250	> 95	5 - 10	31	1
	2 Trinchera A	250	60	> 100	16	1
	3 Trinchera B	250	90	5 - 10	29	1
	4 Colinas	250	> 95	1	19	2
	5 Cabecera	250	0	1 - 5	51	1
	6 Escorrentía	40	90	< 1	31	2
Zona 2 Norte	7 Colina	125	85	< 1	31	3
	8 Terrazas	125	80	< 1	16	2
Zona 3	9 Terrazas	250	85	< 1	32	2
	10 Impacto 3	250	85	< 1	3	4
Zona 6	11 Ladera O	250	95	< 1	40	3
	12 Cumbres E	125	90	< 1	27	4

3.7 Resultados iniciales de la segregación de muestras a media escala

La caracterización radiológica del suelo superficial y del subsuelo junto con el estudio de granulometría han demostrado que no existe un patrón único de contaminación en el terreno, sino más bien al contrario, existen patrones de la contaminación muy distintos. Los resultados obtenidos muestran que en algunas zonas una operación de tamizado en seco podría separar más del 90 % de la actividad en menos del 40 % de la masa, quedando el resto con una $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, lo que en principio permitiría reducir el volumen de material residual radiactivo en un factor de 2 a 5 veces.

Uno de los objetivos con los que inicialmente se planteó este trabajo es confirmar estos hallazgos a media escala, empleando 10 muestras de tierra casi 100 veces mayores (es decir, un volumen nominal 9.2 dm^3 , masa entre 9 y 13 kg) extraídas en 1 m^2 y hasta 20 cm de profundidad en cada posición, obteniéndose más de 100 kg de tierras en cada punto estudiado. Para la medida de estas muestras se empleó el prototipo de tolva-revolver [8], diseñado específicamente para tal efecto y que permite segregar automáticamente las tierras en contaminadas y no contaminadas en función de los resultados obtenidos en la medida de cada muestra. Se extrajeron muestras de 17 puntos en las zonas 2, 3 y 6 (2 316 kg), procesándose en la tolva-revolver 10 de ellas (1 308 kg) como ensayo preliminar para verificar la puesta en marcha de los equipos y métodos.

Para la determinación de la $[^{241}\text{Am}]$ cada uno de los recipientes obtenidos correspondiente a cada muestreo fue medido con un HP Ge (calibrado en eficiencia matemáticamente, como se describe en el apartado 3.2.5) y seguidamente fueron introducidos en la tolva-revolver para su medida con los 4 FIDLER de los que dispone el prototipo. Las incertidumbres relativas asociadas a las determinaciones de actividad fueron del orden del 20 % en ambos tipos de detectores. Esto se debe a la elevada autoabsorción en muestras tan masivas y a la posible heterogeneidad de la distribución de la actividad en el volumen medido.

El estudio comparativo de las medidas realizadas con cada una de las técnicas (HP-Ge y tolva-revolver, ver Figura 100) muestra una excelente correlación entre ambos sistemas de medida ($R^2 > 95 \%$), con una constante $0.9 \pm 0.2 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ y una pendiente de 0.74 ± 0.02 que es similar a la ya obtenida en la Figura 81 y que se puede justificar como consecuencia del sesgo introducido al seleccionar para el estudio muestras con elevada contaminación.

A partir de los resultados obtenidos en el estudio, en la Figura 101 se presentan tres ejemplos con

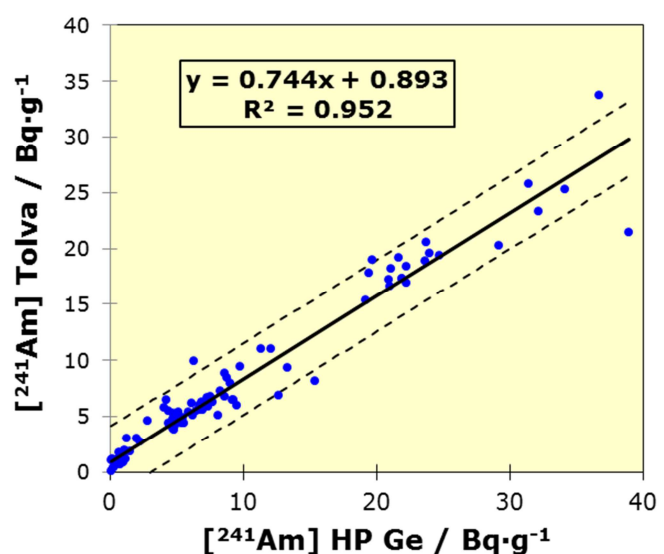


Figura 100: Ajuste entre las medidas de $[^{241}\text{Am}]$ realizadas con el HP-Ge y la tolva-revolver en muestras de tierras contaminadas.

estas medidas comparadas para tres parcelas, incluyendo además las medidas estáticas realizadas con FIDLER antes y después de retirar las muestras en capas de aproximadamente 2 cm de espesor. La primera es representativa de los primeros 20 cm de terreno (0 - 20 cm) y la segunda lo es de los siguientes 20 cm (20 - 40 cm), es decir, de la contaminación remanente tras eliminar la primera capa de tierra contaminada. Como se puede observar en la Figura 101, en los tres ejemplos se aprecia el buen acuerdo entre los tres conjuntos de medidas, salvo en la parcela 1 en la que no se completaron las medidas con la tolva-revólver debido a que las elevadas concentraciones observadas en todas las muestras ($[^{241}\text{Am}] > 200 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$) impedían continuar con su manipulación por motivos de protección radiológica. Una eventual acción de remedio que consistiera en retirar los primeros 20 cm de suelo no cambiaría la situación radiológica ya que permanecerían prácticamente los mismos niveles de contaminación en la siguiente capa de 20 cm, es decir, la parcela 8 estaría en el límite de la restricción parcial de usos ($[^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$), en tanto que en las parcelas 1 y 10 se continuaría superando con claridad el criterio de restricción total de usos ($[^{241}\text{Am}] > 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$).

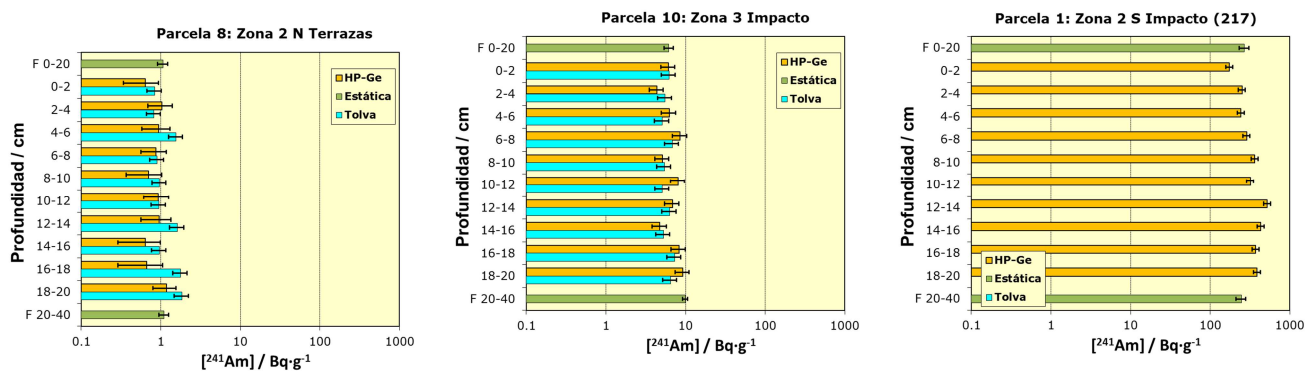


Figura 101: Distribuciones de la $[^{241}\text{Am}]$ en el suelo superficial (0 - 20 cm) determinadas en muestras de 9.2 dm^3 mediante HP Ge y la tolva-revólver. Las barras verdes en las partes superior e inferior de cada gráfica muestran las medidas estáticas antes y después de retirar la muestra.

Se centra el estudio en la parcela 4 (colinas de la Zona 2 S), dado que puede ser un terreno susceptible de ser sometido a acciones de remedio y reducción de volumen mediante tamizado en seco. Lo primero sería analizar los resultados obtenidos de la caracterización radiológica de esta parcela (ver Figura 102), donde se ha demostrado que la contaminación está en el suelo superficial, es decir, en los primeros 15 - 20 cm (Tabla XXXI). Además, el estudio de granulometría evidenció que es posible reducir en un factor 2 el volumen de tierras contaminadas extendido en 1 ha empleando un tamizado en seco con

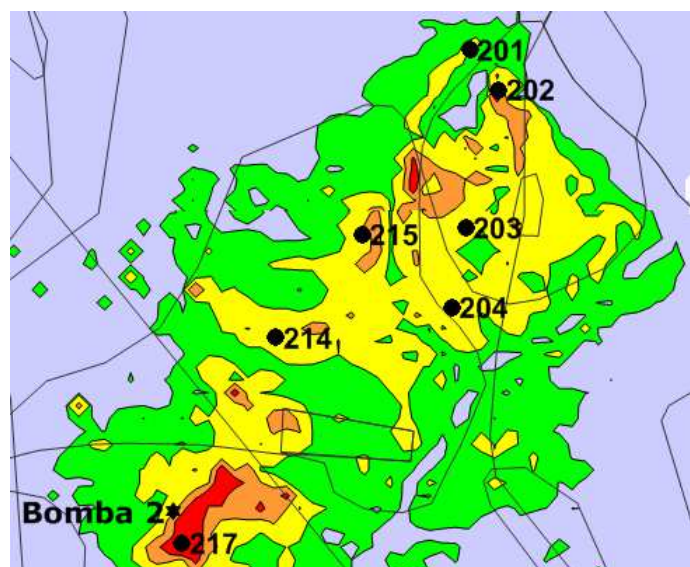


Figura 102: Situación de las muestras de 9.2 dm^3 en las parcelas 4 (Colinas) y 5 (Cabecera) de la zona 2 S.

mallas de 250 μm (Tabla XXXIV), retirándose el 95 % de la actividad en el 50 % de la masa y quedando el resto del suelo tamizado con $^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.

En la fila superior de la Figura 103 se observa que en la colina (muestras 202, 203 y 204) la $^{241}\text{Am}]$ sigue un patrón que desciende con la profundidad desde valores $> 10 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en los primeros 6 cm hasta quedar por debajo de $1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ para profundidades mayores de 15 cm. Este comportamiento se atribuye a que la colina ha permanecido inalterada desde el accidente y como se esperaba la contaminación apenas ha progresado en la profundidad del terreno. La medida estática con FIDLER tras extraer la muestra es claramente $^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, lo que indica que el suelo quedaría libre de cualquier restricción de uso si se retiran los primeros 15 – 20 cm de espesor de tierra.

A modo de comparación, la fila inferior de la Figura 103 muestra los resultados de otras tres muestras (215, 214 y 201) tomadas en las terrazas de la parcela 5 que lindan con la colina, apenas a unos metros de distancia de las muestras anteriores. En ellas se observa que $^{241}\text{Am}] \sim 10 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ uniformemente en toda la profundidad estudiada y que la medida estática posterior indica que la contaminación continuará en niveles similares al menos en los siguientes 15 – 20 cm. Como se ha dicho con anterioridad, estas terrazas fueron remediadas en 1966 y posteriormente fueron alteradas para su uso agrícola y conformación de un camino que transcurre hacia el fondo del valle.

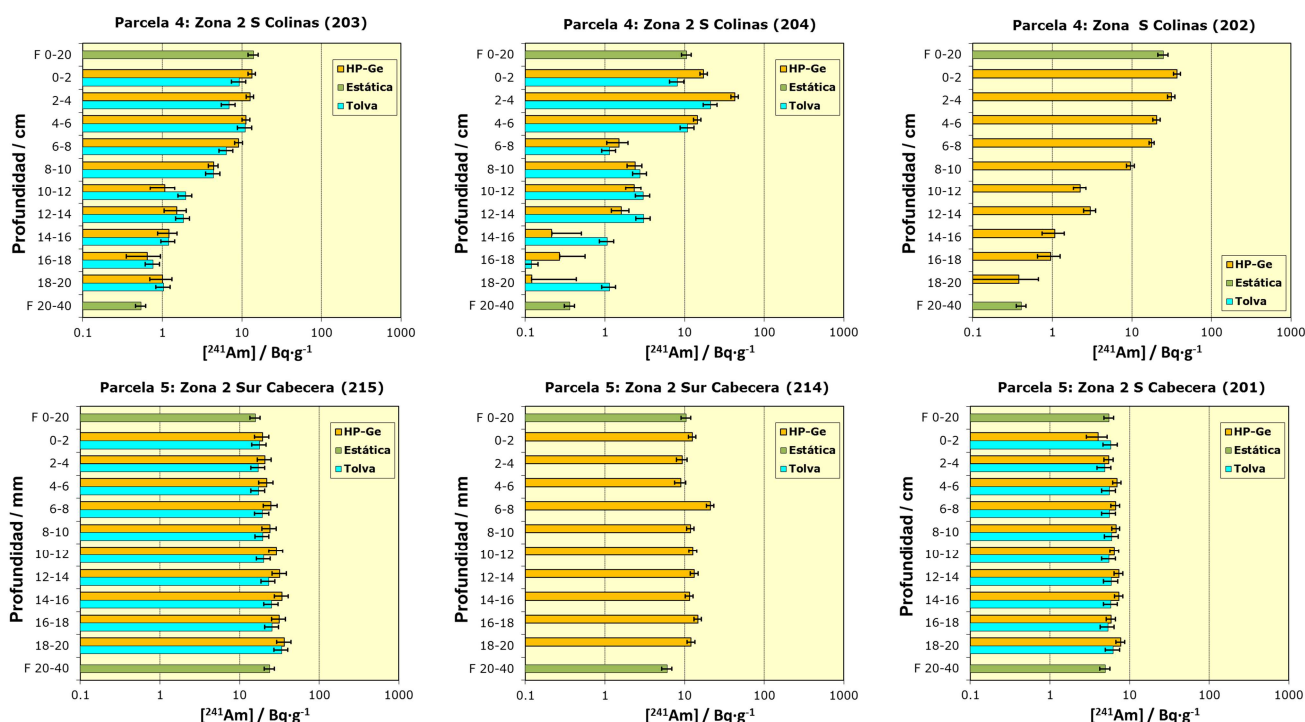


Figura 103: Distribución de la $^{241}\text{Am}]$ en el suelo superficial (0 - 20 cm) determinadas en muestras de 9.2 dm^3 mediante HP Ge y la tolva-revólver (FIDLER x 4) en la parcela 4 (fila superior, Zona 2 S Colinas) y la parcela 5 (fila inferior, zona 2 S Cabecera). Los números del título de cada gráfica corresponden con las localizaciones de la muestra indicadas en la Figura 102. Las barras verdes en las partes superior e inferior de cada gráfica muestran las medidas estáticas con FIDLER antes y después de retirar la muestra.

A continuación se procedió a separar las fracciones granulométricas de varias de estas muestras con técnicas industriales apropiadas para el tratamiento de muestras de tierras de hasta 20 kg. Para ello se emplearon tamices con mallas de 125, 250 y 2000 μm ,

considerando que son los más comunes en las separaciones iniciales de tierras efectuadas en procesos industriales. Los resultados obtenidos en estos ensayos para las parcelas 4 y 5 se recopilan en la Figura 104.

Se observa que en las muestras 203 y 204 de la parcela 4 (colina), más del 95 % de la actividad quedaría concentrada en el 40 - 50 % de la masa con tamaño de partícula < 250 μm tras un tamizado en seco que es relativamente sencillo implementar a escala industrial. Los niveles en la fracción de gruesos con tamaño > 250 μm serían $[\text{}^{241}\text{Am}] \ll 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. Ello supone un factor de reducción del orden de 2 en el volumen del material residual radiactivo procedente de esta parcela. En contraste, las dos muestras procedentes de la parcela 5 (201 y 215) evidencian que en estos terrenos el tamizado en seco sería ineficaz ya que no se consigue que $[\text{}^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en ninguna de las fracciones granulométricas y además las abundancias de masa y actividad son similares para todos los tamaños de partícula estudiados.

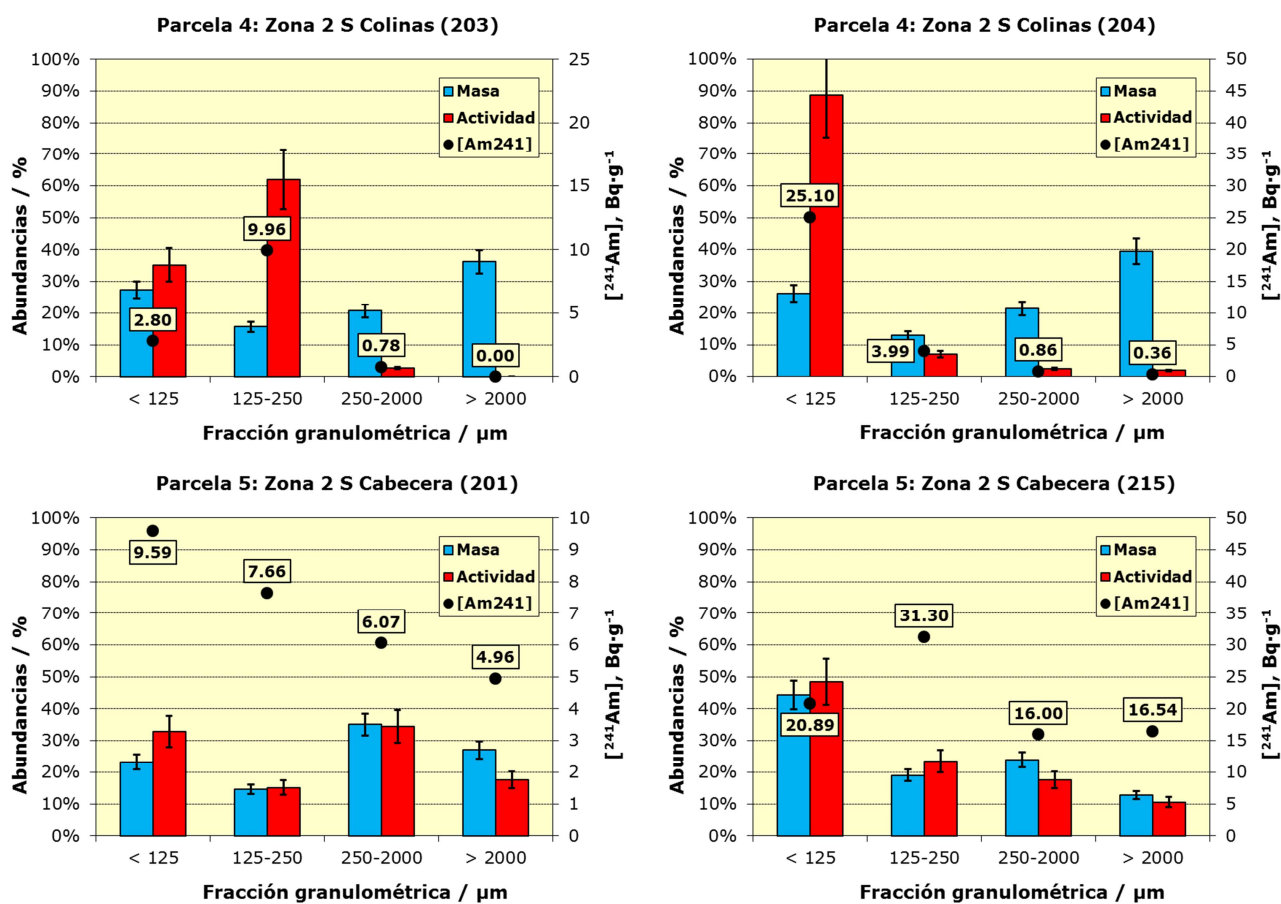


Figura 104: Distribuciones de la masa y de la actividad de ^{241}Am en las fracciones granulométricas de las muestras de 9.2 dm^3 procedentes de las parcelas 4 (Colinas) y 5 (Cabecera) de la zona 2 Sur. Las barras de error indican la incertidumbre de las abundancias con un intervalo de confianza del 95 % ($k = 2$).

Una vez queda confirmada la eficacia del tamizado en seco en la parcela 4 con muestras y métodos a escala semi-industrial, se procede a la evaluación de si dicho tratamiento de reducción de residuos se podría aplicar en las zonas 2 N, 3 y 6 como se había predicho en la Tabla XXXIV. Hay que hacer notar que el muestreo en la zona 6 fue

distinto ya que, debido a las dificultades de acceso y transporte de las muestras, se limitó a recoger muestras de suelo superficial en varios puntos donde las medidas dinámicas habían constatado $[^{241}\text{Am}] > 5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. Los resultados obtenidos de la realización de dichos análisis con muestras procedentes de dichas zonas se muestran en la Figura 105. Como se puede observar se aprecia que en los tres casos el tamaño de separación eficaz sería de 2 mm para obtener un factor de reducción ≥ 2 .

En la parcela 8 (terrazas zona 2 N) se ha obtenido que con una segregación de 2 mm más del 90 % de la actividad queda concentrada en ≈ 50 % de la masa, siendo $[^{241}\text{Am}] \ll 0.1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en el 50 % que supone la fracción de gruesos restante. Para la parcela 7 (Colina Zona 2 N) se asumieron como representativos los resultados ya expuestos para la parcela 4 (Colina Zona 2 S) dadas sus semejanzas en cuanto a composición del terreno, granulometría, concentración y distribución de la actividad en los primeros 15 cm de suelo. En consecuencia, el tamizado en seco permitiría reducir el volumen de material residual radiactivo en un factor entre 2 y 3. La medida estática con FIDLER tras la extracción de la muestra indica que $[^{241}\text{Am}] \approx 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, y por tanto es necesario progresar más en profundidad para conseguir estar claramente por debajo de los niveles de restricción de uso.

En las parcelas 9 y 10 de la Zona 3 se ha obtenido también que con una segregación de 2 mm más del 90 % de la actividad queda concentrada en ≈ 50 % de la masa, siendo $[^{241}\text{Am}] \ll 0.1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en el 50 % que supone la fracción de gruesos restante. Sin embargo, como se aprecia en la Figura 101, la medida estática con FIDLER indica que la contaminación continuará al menos en los siguientes 15-20 cm. De hecho, algunos sondeos demuestran que habría que excavar hasta 1 m de profundidad, aunque es de esperar que el terreno tenga las mismas características y por tanto el volumen de material residual radiactivo podría reducirse en un factor entre 2 y 4.

Los resultados de la zona 6 son particularmente importantes porque afectan a una gran extensión (casi 9 ha) que, aunque solo afecta al suelo superficial 0 – 20 cm, supone un volumen contaminado $> 11\,500 \text{ m}^3$. La Figura 105 confirma que se puede alcanzar un factor de reducción de 2 con un tamizado en seco de 2 mm. Incluso se puede conseguir un factor de reducción de 4 empleando tamices de $250 \mu\text{m}$ en la parcela 12 (Zona 6 Cumbres E), como se observa en la Figura 99.

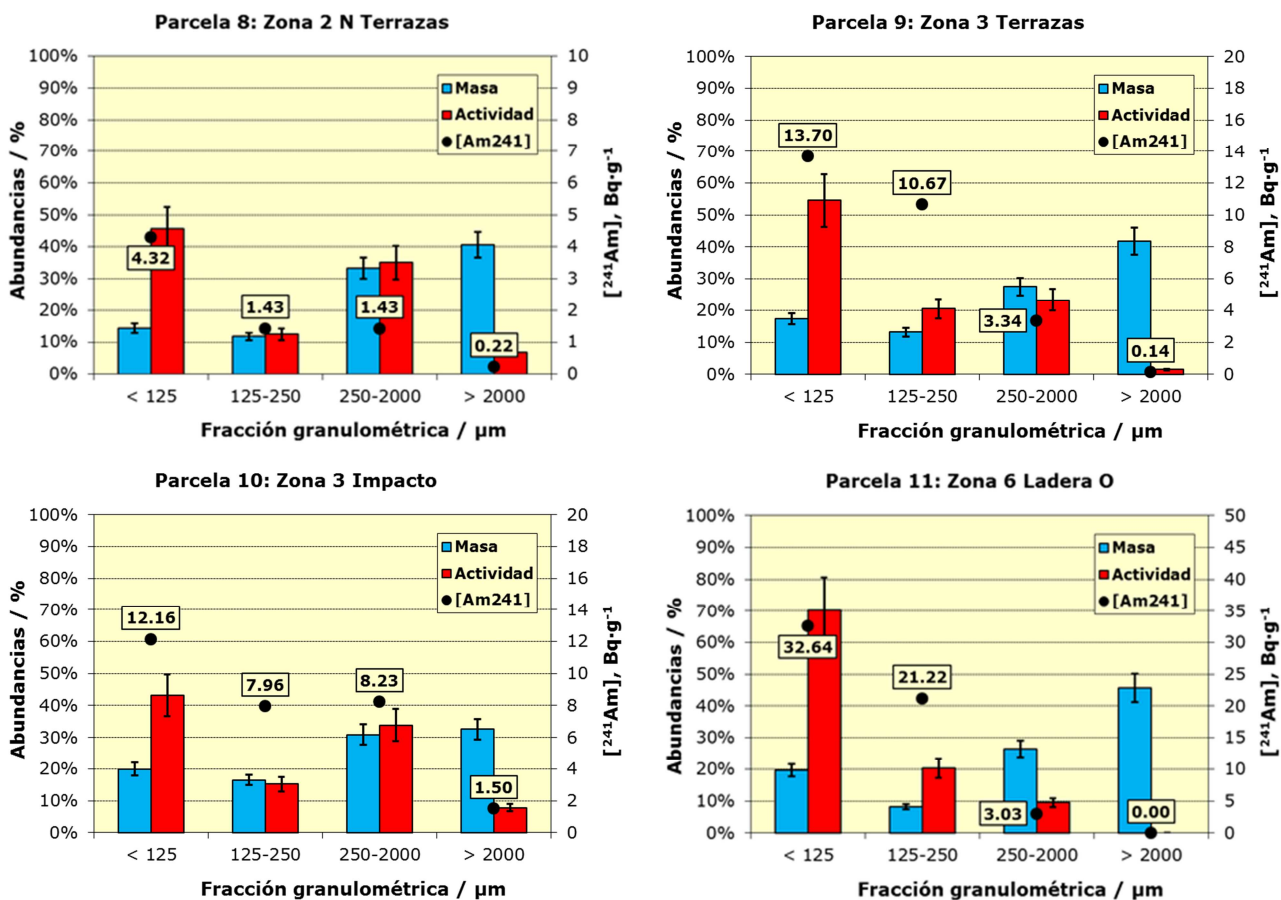


Figura 105: Distribuciones de la masa y de la actividad de ^{241}Am en las fracciones granulométricas de las muestras de 9.2 dm^3 procedentes de las zona 2 Norte, 3 y 6. Las barras de error indican la incertidumbre de las abundancias con un intervalo de confianza del 95 % ($k = 2$).

3.8 Evaluación de las superficies y volúmenes de los terrenos contaminados

Partiendo de las medidas realizadas y expuestas en la memoria, de la caracterización radiológica de los terrenos afectados y de las metodologías ensayadas a escala de planta piloto, como último punto de esta memoria se plantea evaluar cuál será la cantidad de terrenos contaminados sobre la que será necesario intervenir al objeto de liberar el terreno para cualquier uso de acuerdo a los criterios de restricción establecidos por el CSN. Teniendo en cuenta todos los resultados mostrados en apartados anteriores, en la Tabla XXXV se presenta la estimación de terrenos impactados en cada una de las zonas y parcelas.

Los valores reflejados en la Tabla XXXV se han deducido teniendo en cuenta que:

- La superficie afectada se determinó a partir de los modelos de áreas basados en los resultados de las más de 324 000 medidas dinámicas (Tabla XXIV).
- El intervalo de profundidad donde se encontraron muestras o medidas del perfil del sondeo con $[^{241}\text{Am}] > 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$. Esto no significa que los terrenos estén contaminados en todo el intervalo.
- El volumen in situ se estima a partir de modelos tridimensionales basados en la medida de los perfiles radiológicos de los 321 sondeos efectuados hasta 5 m de profundidad (Tabla XXX).
- El volumen esponjado se determinó incrementando los volúmenes in situ con los porcentajes de esponjamiento obtenidos en el estudio de granulometría (Tabla XXXIV).
- El volumen tras tamizado en seco se obtiene al aplicar los factores de reducción al volumen esponjado en aquellas parcelas donde, además, se obtenga $[^{241}\text{Am}] < 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ en la fracción de gruesos segregada según se detalla también en la Tabla XXXIV.

A modo de resumen, y en el momento de la presentación de esta memoria, se estima en 16 ha la superficie afectada en las pedanías de Palomares y Villaricos con niveles de contaminación de Pu superiores a los criterios de restricción de uso establecidos por el CSN. El volumen in situ de los terrenos contaminados se puede estimar en más de 38 400 m³ (que se incrementaría hasta 50 500 m³ si dicho volumen fuera extraído debido al esponjamiento de las tierras al disminuir o eliminar su compactación). Sin embargo, debido a la desigual distribución de la actividad y la masa de las tierras en función del tamaño de partícula, un eventual tamizado en seco de las tierras podría reducir el volumen esponjado en un 38 %, estimándose que el volumen final de tierras contaminadas con actinoides con concentraciones superiores a los criterios de restricción de uso establecidos por el CSN sería de 31 500 m³.

Tabla XXXV: Evaluación a la fecha de este memoria de las áreas y volúmenes contaminados en Palomares como consecuencia del accidente de 1966.

	Parcela	Área/ha	Profundidad /m	Volumen in situ/m ³	Volumen esponjado/m ³	Volumen tras tamizado/m ³
Zona 2 Sur	1 Impacto 2	1.5	0 - 5	6 000	7 860	7 860
	2 Trinchera A	0.04	0 - 5	2 800	3 248	3 248
	3 Trinchera B	0.1	0 - 5	1 100	1 419	1 419
	4 Colinas	2.1	0 - 0.2	3 000	3 570	1 785
	5 Cabecera	2.0	0 - 3	4 800	7 248	7 248
	6 Escorrentía	0.5	0 - 0.2	4 840	6 340	3 170
Zona 2 Norte	7 Colina	1.0	0 - 0.2	1 200	1 572	524
	8 Terrazas	0.3	0 - 0.2	1 000	1 160	580
Zona 3	9 Terrazas	0.35	0 - 2	1 500	1 980	990
	10 Impacto 3	0.3	0 - 2	700	721	180
Zona 6	11 Ladera O	4.0	0 - 0.2	6 000	8 400	2 800
	12 Cumbres E	3.7	0 - 0.2	5 500	6 985	1 746
TOTAL		15.8	0 - 5	38 440	50 503	31 551

4. CONCLUSIONES

Se han alcanzado los objetivos que se plantearon al inicio de este trabajo de investigación como queda patente en las conclusiones que se detallan a continuación:

- El modelo termodinámico propuesto permite explicar la oxidación del Pu y su posterior comportamiento en el medioambiente del área de Palomares. La contaminación radiactiva debida al accidente de 1966 consiste en su mayoría en partículas muy finas (1 – 10 μm) de óxidos de Pu formados inmediatamente después del accidente y que se dispersaron en el medioambiente, formando agregados con las partículas del suelo. Debido al calor generado en la reacción exotérmica, también se encuentran ocasionalmente agregados de óxidos de Pu de mayor tamaño (10 – 500 μm) y cuya actividad varía entre 1 y 10 kBq.
- A partir de la evolución de las razones isotópicas entre los radionucleidos ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu y ^{241}Am , se ha determinado que el Pu empleado en la fabricación de las bombas fue extraído entre 1956 y 1960, lo que significa que la fracción másica máxima de ^{241}Am (generado por el ^{241}Pu) se alcanzará en torno al año 2030.
- La razón de actividad $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu} = 0.31 \pm 0.02$ será constante en el periodo 2006 - 2066, lo que permite determinar la actividad de Pu a partir de la medida espectrométrica de ^{241}Am sobre el terreno y en muestras.
- Los métodos dinámicos de caracterización radiológica basados en la medida espectrométrica in situ del ^{241}Am permiten la caracterización de grandes superficies con resoluciones del orden de 1 m^2 , tiempos de recuento inferiores a 5 s y límites de detección para la [^{241}Am] inferiores a 0.5 $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.
- El análisis estadístico de las medidas de la tasa de dosis sobre el terreno revelan que esta variable se incrementa sobre el fondo natural hasta en 0.23 $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ debido a la contaminación de actinoides en el suelo superficial. Este incremento no supone un impacto radiológico significativo ya que en España existen zonas con valores superiores debidos al fondo natural.
- Las medidas de las muestras inalteradas de suelo superficial (0 – 15 cm) y subsuelo (0 – 5 m) permiten confirmar que la distribución de la contaminación radiactiva con la profundidad es muy variada y depende fundamentalmente de las acciones de remedio emprendidas en 1966 y del uso posterior de las tierras.
- La caracterización radiológica de los terrenos basada en las medidas dinámicas, las medidas estáticas y el análisis de muestras inalteradas de suelo superficial y del subsuelo hasta 5 m ha permitido evaluar la contaminación in situ por actinoides que supera los criterios de restricción de uso de los terrenos establecidos por el CSN. El volumen in situ de suelo contaminado es de

38 400 m³ en una superficie de 16 ha que afecta a las pedanías de Palomares (zonas 2 y 3) y Villaricos (zona 6).

- El incremento de volumen debido al esponjamiento del material en la disgregación de las muestras varía entre el 3 y el 85 %, lo que elevaría el volumen de tierras contaminadas a 50 500 m³.
- La aplicación del tamizado en seco permite en algunas parcelas concentrar la mayor parte de la actividad en una fracción de la masa, reduciendo el volumen de los residuos radiactivos a 31 551 m³.
- Los ensayos a escala de planta piloto con muestras de más de 100 kg de tierras caracterizadas en volúmenes de 9.2 dm³ con el prototipo de tolva-revólver corroboran la posibilidad de la reducción del volumen de residuos radiactivos mediante el tamizado en seco.
- El buen acuerdo entre las técnicas de medida independientes empleadas en la caracterización radiológica valida la consistencia entre los métodos y la calidad de las medidas experimentales recopiladas en esta memoria.
- A partir de la caracterización radiológica expuesta en esta memoria y de acuerdo con la legislación vigente en España en materia de protección radiológica, cabe definir la situación del emplazamiento como exposición perdurable al ser la contaminación actual un efecto residual de una emergencia radiológica pasada.

5. LÍNEAS FUTURAS DE INVESTIGACIÓN

Los estudios y medidas realizadas en esta memoria permiten establecer unas líneas futuras a investigar sobre todo relacionadas con la intervención en los terrenos afectados por la contaminación por actinoides para reducir la exposición de las personas y la extensión de las técnicas de caracterización radiológica a otros detectores y contaminantes, que son las siguientes:

- Extender la aplicación de los métodos de medida dinámicas y estáticas a otros detectores de centelleo de última generación como el LaBr_3 o CeBr_3 y su aplicación en la caracterización de terrenos o superficies de paramentos impactados por productos de fisión (^{137}Cs , ^{60}Co) o radionucleidos naturales (estériles de minería del U).
- Desarrollar métodos de calibración para la medida de contaminación de actinoides y otros contaminantes en suelos basados en geometrías y composiciones de terrenos realistas.
- Automatizar el movimiento de los equipos de medida FIDLER para la caracterización de superficies de terreno mediante su incorporación a sistemas de transporte terrestre dirigidos por GPS.
- Investigar el impacto medioambiental de las técnicas industriales de extracción de las tierras contaminadas, la separación por tamaño de partícula, los porcentajes de esponjamiento, reducción de volumen y concentración de la actividad en una fracción de la masa.
- Desarrollar metodologías para la estimación de la actividad de actinoides y otros contaminantes en contenedores industriales homologados para el almacenaje y transporte de residuos radiactivos. Dichas metodologías deberán considerar la medida directa durante la producción de los materiales, la segregación en función de las medidas radiológicas y el diseño de muestreos discretos representativos.

6. REFERENCIAS

- [1] W. Place, F. Cobb y C. Defferding, «Palomares Summary Report,» Defence Nuclear Agency Field Command, Kirtland AFB, New Mexico, USA, 1975.
- [2] E. Iranzo, C. Richmond, E. Sollet y G. Voelz, *Scientific Review of the Palomares Surveillance Program 1966-1998*, Madrid, 1998.
- [3] Consejo de Seguridad Nuclear, «Dictamen favorable del CSN sobre el "Plan de Investigación a desarrollar por el CIEMAT en los terrenos de Palomares que requieren una especial vigilancia radiológica ambiental".,» 11 de diciembre de 2003.
- [4] C. Schmidt y J. Koch, «Plutonium survey with X-ray detectors,» Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, 1966.
- [5] Grove Engineering Inc., *Microshield® User's Manual.*, Lynchburg, VA (EUA): Grove Engineering Inc., 1992-2007.
- [6] Canberra Industries, Inc., «Model S574 LABSOCS Calibration Software,» Canberra Industries, Inc., Meriden, 2013b.
- [7] Canberra Industries, Inc., «Model S573 ISOCS Calibration Software. Technical Reference Manual.,» Canberra Industries, Inc., Meriden, 2012.
- [8] C. Sancho Llerandi, D. Burgos García, E. Correa Garcés,, J. Sáez Vergara y J. Abarrategui Rodríguez, «Dispositivo de medida de actividad y segregación de tierras contaminadas por 241Am». España Patente P201530582 (solicitada), 29 abril 2015.
- [9] International Atomic Energy Agency, «IAEA Safety Glossary. Terminology used in Nuclear Safety and Radiation Protection,» International Atomic Energy Agency, Viena, 2007.
- [10] International Atomic Energy Agency, «Remediation process for areas affected by past activities and accidents,» International Atomic Energy Agency, Viena, 2007.
- [11] C. Sublette, «The Nuclear Weapon Archive,» 3 septiembre 2007. [En línea]. Available: <http://nuclearweaponarchive.org/>. [Último acceso: 30 noviembre 2014].
- [12] Organización de las Naciones Unidas, «Tratado de Prohibición Completa de los Ensayos Nucleares,» Organización de las Naciones Unidas, Nueva York, EEUU, 1996.
- [13] International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC), «IUPAC Periodic Table of the Elements,» International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC), Research Triangle Park, North Carolina, USA, 2013.
- [14] S. Hecker, «Plutonium and its Alloys,» *Los Alamos Science*, nº 26, pp. 290-335, 2000.
- [15] J. Smith y E. Kmetko, «Magnetism or bonding: A nearly periodic table of transition elements,» *Journal of the Less Common Metals*, vol. 90, nº 1, pp. 83-88, 1983.
- [16] D. Delacroix, J. Guerre, P. Leblanc y C. Hickman, «Radionuclide and Radiation Protection Data Handbook 2002,» *Radiation Protection Dosimetry*, vol. 98, nº 1, pp. 1-168, 2002.
- [17] M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, R. Helmer, A. Nichols, E. Schönfeld y R. Dersch, *Table of Radionuclides*, Sèvres: Bureau International des Poids et Mesures, 2004.
- [18] G. Seaborg, «The Transuranium Elements,» *Science*, vol. 104, nº 2704, pp. 379-386, 1946.
- [19] G. Seaborg, «The Plutonium Story (LBL-13492),» de *Lawrence Berkeley Laboratory/Lawrence Livermore National Laboratory, Actinides 1981*, University of California, 1981.
- [20] D. Hoffman, F. Lawrence, J. Mewherter y F. Rourke, «Detection of Plutonium-244 in

- nature,» *Nature*, nº 234, pp. 132-134, 1971.
- [21] F. Gauthier-Lafaye, P. Holliger y P. Blanc, «Natural fission reactors in the Franceville basin, Gabon: A review of the conditions and results of a critical event in a geologic system,» *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol. 60, nº 23, pp. 4831-4852, 1996.
- [22] G. Sánchez, «Reactores nucleares de hace 2000 millones de años y las constantes del Universo,» *Nuclear España*, 2009.
- [23] International Atomic Energy Agency, «Safe handling and storage of Plutonium. Safety Report Series nº9,» International Atomic Energy Agency, Viena, 1998.
- [24] L. Morss, N. Edelstein y J. Fuger, *The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements (Fourth Edition)*, Dordrecht (The Netherlands): Springer, 2010.
- [25] M. Taube, *Plutonium*, Varsovia: Pergamon Press, 1964.
- [26] S. Hecker y L. Timofeeva, «A tale of two diagrams,» *Los Alamos Science*, nº 26, pp. 244-251, 2000.
- [27] D. Clark, «The Chemical Complexities of Plutonium,» *Los Alamos Science*, nº 26, pp. 364-381, 2000.
- [28] S. Greenfield, «Rain scavenging of radioactive particulate matter from the Atmosphere,» *Journal of Meteorology*, vol. 14, pp. 115-125, 1957.
- [29] W. Runde, «The Chemical interactions of Actinides in the Environment,» *Los Alamos Science*, nº 26, pp. 392-411, 2006.
- [30] M. d. R. Piñero Álvarez, «Los convenios hispano-norteamericanos de 1953,» *Historia actual on line*, nº 11 (otoño,2006), pp. 175-181, 2006.
- [31] D. Wilson, «Analysis of ballistics of four MK28-FI weapons released as a result of the collision of a B-52 and KC-135 near Vera, Spain, on January 1966,» Department of the Air Force, New York (USA), 1966.
- [32] S. Asselin, «B52/KC-135 collision near Palomares, Spain (U),» Sandia Corporation, Albuquerque, New Mexico, USA, 1966.
- [33] Consejo de Seguridad Nuclear, Palomares, en el camino de la normalización radiológica (1966-2013), Madrid: Consejo de Seguridad Nuclear, 2013.
- [34] E. Iranzo, E. Mingarro, S. Salvador, C. Iranzo y P. Rivas, «Geochemical distribution of Plutonium and Americium in Palomares soils,» de *The Cycling of long-lived radionuclides in the Biosphere: Observations and Models*, Bruselas, 1986.
- [35] E. Iranzo y C. Richmond, «Plutonium contamination twenty years after the nuclear weapons accident in Spain,» de *8th International Congress of Radiation Research*, Edinburgh, 1987.
- [36] J. Hager, L. Fry, S. Jacks y D. Hill, «Datums, ellipsoids, grids, and grid reference systems,» Defense Mapping Agency, Fairfax, VA, 1996.
- [37] Agencia Estatal de Meteorología, «Valores climatológicos normales, Almería Aeropuerto.» [En línea]. Available: <http://www.aemet.es/>. [Último acceso: 12 2 2015].
- [38] J. Sancho Ávila, J. Riesco Martín, C. Jiménez Alonso, M. Sánchez de Cos Escuin, J. Montero Cadalso y M. López Bartolomé, «Atlas de radiación solar en España utilizando datos del SAF de clima de EUMETSAT,» Agencia Estatal de Meteorología, Madrid, 2006.
- [39] A. Espinosa Canal, «Comportamiento ambiental de las partículas de combustible nuclear (fundamentalmente Pu) tras un accidente nuclear en un ecosistema de tipo mediterráneo,» CIEMAT, Madrid, 2003.
- [40] Instituto Geológico y Minero de España, «Mapa Geológico de España. Hoja 1015, Garrucha,» Instituto Geológico y Minero de España, Madrid, 1972.
- [41] E. Iranzo, P. Rivas, E. Mingarro, C. Marín, M. Espinosa y C. Iranzo, «Distribution and migration of Plutonium in soils of an accidentally contaminated environment,» *Radiochemical Acta*, nº 52/53, pp. 249-256, 1991.
- [42] Consejería de Medioambiente y Ordenación del Territorio de la Junta de Andalucía, «Plan de Gestión de la Zona Especial de Conservación Sierras de Almagrera, de los Pinos y el Aguilón (ES6110012),» 2014.

- [43] International Atomic Energy Agency, «Radioactive particles in the environment: sources, particle characterization and analytical techniques,» IAEA TECDOC-1663, Viena, 2011.
- [44] X. Hou, A. Aldahan, G. Possnert, G. Lujaniene, J. Lehto, L. Skipperud, O. Lind y B. Salbu, «Speciation Analysis of Radionuclides in the Environment. NSK-B SPECIATION project report 2009,» NKS Secretariat, Roskilde, 2009.
- [45] C. Sill, «The particle problem as related to sample inhomogeneity,» de *Environmental Plutonium Symposium*, Los Alamos, CA (EUA), 1971.
- [46] A. Aragón del Valle, «Radioecología de transuránidos: caracterización y comportamiento de partículas de combustible nuclear en suelos afectados por el accidente de Palomares,» CIEMAT, Madrid, 2003.
- [47] M. Jiménez Ramos, R. García Tenorio, I. Vioque, G. Manjón y M. García León, «Presence of plutonium contamination in soils from Palomares,» *Environmental pollution*, vol. 142, pp. 487-492, 2006.
- [48] A. Aragón, A. Espinosa, B. de la Cruz y J. Fernández, «Characterization of radioactive particles from the Palomares accident,» *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 99, pp. 1061-1067, 2008.
- [49] R. Pöllänen, M. Ketterer, S. Lehto, M. Hokkanen, T. Ikäheimonen, T. Siiskonen, M. Moring, M. Rubio Montero y A. Martín Sánchez, «Multi-technique characterization of a nuclear bomb particle from the Palomares accident,» *Journal of environmental radioactivity*, vol. 90, pp. 15-28, 2006.
- [50] G. de Diego, «Caracterización mediante microscopía electrónica de barrido de una muestra radiactiva procedente de Palomares,» CIEMAT, Madrid, 2010.
- [51] O. Lind, B. Salbu, K. Janssens, K. Proost, M. García León y R. García Tenorio, «Characterization of U/Pu particles originating from the nuclear accident at Palomares, Spain, 1966 and Thule, Greenland, 1968,» *Science of the Total Environment*, nº 376, pp. 294-305, 2007.
- [52] J. Shinn, «Complementary Pu resuspension study at Palomares, Spain,» Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, 2002.
- [53] F. Martín y B. Aceña, «Possible effects of strong winds on particle resuspension in Palomares area (Spain),» CIEMAT, Madrid, 2009.
- [54] J. Sáez Vergara, E. Correa Garcés y M. Lanzas Sánchez, «Análisis de los registros de viento en la torre meteorológica de Palomares (2009 y 2010),» CIEMAT, Madrid, 2011.
- [55] M. Eriksson, «On Weapons Plutonium in the Arctic Environment,» Riso National Laboratory, Roskilde, 2002.
- [56] L. Cooper, J. Kelley, L. Bond, K. Orlandini y J. Grebmeier, «Sources of the transuranic elements plutonium and neptunium in arctic marine sediments,» *Marine Chemistry*, vol. 69, pp. 25-276, 2000.
- [57] P. Mitchell, L. León, H. Dahlgard, C. Gascó y C. Sánchez Cabeza, «Perturbation in the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ global fallout in local sediments following the nuclear accidents at Thule (Greenland) and Palomares (Spain),» *Science of the Total Environment*, nº 202, pp. 147-153, 1997.
- [58] J. Sáez Vergara, E. Correa Garcés, D. Burgos García y M. Lanzas Sánchez, «Mapa radiológico tridimensional de Palomares. Informe Final,» CIEMAT, Madrid, 2009.
- [59] C. Gascó, M. Antón, A. Espinosa, A. Aragón, A. Álvarez, N. Navarro y E. García Toraño, «Procedures to define Pu isotopic ratios characterizing a contaminated area in Palomares (Spain),» *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, nº 222, pp. 81-86, 1997.
- [60] M. Antón Mateos, «Dinámica sedimentaria de radionucleidos de vida larga en el litoral mediterráneo occidental,» Universidad Complutense, Madrid, 1998.
- [61] M. Rubio Montero y A. Martín Sánchez, «Plutonium contamination from accidental release or simply fallout: study of soils at Palomares (Spain),» *Journal of Environmental Radioactivity*, nº 55, pp. 157-165, 2001.

- [62] E. Chamizo, M. García León, H. Synal , M. Suter y L. Wacker, «Determination of the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratio in soils from Palomares (Spain) by low-energy accelerator mass spectrometry,» *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol. 249, pp. 768-771, 2006.
- [63] D. Burgos, M. Lanzas, N. González y M. Herbella, «Actividad de Pu-238 y de Pu-241 en muestras de suelo de Palomares,» CIEMAT, Madrid, 2009.
- [64] G. Manjón y M. García León, «The presence of man-made radionuclides in the environment in the South of Spain,» *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 28, nº 2, pp. 171-189, 1995.
- [65] L. Romero González, «Estudio del transporte tierra-mar de elementos transuránidos. Aplicación al accidente de Palomares (Almería) de 1966,» CIEMAT, Madrid, 1991.
- [66] Consejo de la Unión Europea, «Directiva 2013/59/EURATOM del Consejo por la que se establecen normas de seguridad básicas para la protección contra los peligros derivados de la exposición a radiaciones ionizantes,» Diario Oficial de la Unión Europea, Bruselas, 17 de enero 2014.
- [67] International Atomic Energy Agency, «Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International basic Safety Standards,» International Atomic Energy Agency, Viena, 2014.
- [68] International Atomic Energy Agency, «Monitoring for compliance with remediation criteria for sites,» International Atomic Energy Agency, Vienna, 2012.
- [69] International Atomic Energy Agency, «Characterization of radioactively contaminated sites for remediation purposes,» International Atomic Energy Agency, Vienna, 1998b.
- [70] International Commission on Radiological Protection, «The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection,» Elsevier, 2007.
- [71] Comisión Internacional de Protección Radiológica, «Las recomendaciones 2007 de la Comisión Internacional de Protección Radiológica. Traducción oficial al español,» Sociedad Española de Protección Radiológica, Madrid, 2008.
- [72] «RD 783/2001, de 6 de julio, sobre el Reglamento sobre protección sanitaria contra radiaciones ionizantes, modificado por RD 1439/2010, de 5 de noviembre,» BOE, Madrid, 2001-2010.
- [73] Consejo de Seguridad Nuclear, «Propuesta de ocupación temporal de terrenos en la zona de Palomares,» Madrid, 2007a.
- [74] Consejo de Seguridad Nuclear, «Caracterización radiológica detallada de Palomares,» Madrid, 2008.
- [75] C. Attwood, J. Titley, J. Simmonds y C. Robinson , «Revised generalised Derived Limits for radioisotopes of Strontium, Ruthenium, Iodine, Caesium, Plutonium, Americium and Curium,» *Documents of the NRPB*, vol. 9, nº 1, pp. 1-60, 1998.
- [76] International Atomic Energy Agency, «Determination and use of scaling factors for waste characterization in nuclear power plants,» International Atomic Energy Agency, Viena, 2009.
- [77] M. Lépy, A. Pearce y O. Sima, «Uncertainties in gamma-ray spectrometry,» *Metrologia*, nº 52, pp. 123-145, 2015.
- [78] G. Knoll, *Radiation detection and measurement (second edition)*, New York City: John Wiley & sons, 1989.
- [79] G. Gilmore y J. Hemingway, *Practical Gamma-Ray Spectrometry*, Chichester: John Wiley and Sons, 1995.
- [80] Canberra Industries, Inc., *Genie 2000 3,3 Customization Tools manual*, Meriden: Canberra Industries, 2003.
- [81] «Evaluation of Surface Contamination – Part 1: Beta Emitters and Alpha Emitters. ISO-7503-1 (1st Edition),» International Organization for Standardization, ISO, Geneva, 1988.
- [82] Department of Defense, Department of Energy, Environmental Protection Agency,

- Nuclear Regulatory Commission, «Multi-Agency Radiation Survey and Assessment of Materials and Equipment Manual (MARSAME),» Department of Defense, Department of Energy, Environmental Protection Agency, Nuclear Regulatory Commission, 2009.
- [83] Centro Español de Metrología, «Evaluación de los datos de medición. Guía para la expresión de la incertidumbre de medida,» Centro Español de Metrología, Tres Cantos, 2008.
- [84] E. Correa Garcés, y J. Sáez Vergara, «Uncertainty analysis for the topsoil radiological characterization using FIDLER scanning measurements.,» CIEMAT, Madrid, 2009.
- [85] D. Myers, «The biological hazard and measurement of Plutonium,» Lawrence Livermore Laboratory, Livermore, 1975.
- [86] R. Buchheit Jr. y C. Marianno, «Update of technology for use with FIDLER detectors,» *Radiation Protection Management*, vol. 22, nº 4, pp. 19-22, 2005.
- [87] C. Marianno, «An Examination of the Scanning Detection Efficiency of the FIDLER in Relation to Data Logging and Global Positioning Technology.,» Oregon State University, Corvallis, 2001.
- [88] Canberra Industries, Inc., *UniSpec, the Universal MCA for Scintillation Spectrometry*, Meriden, EUA, 2005.
- [89] ORTEC-AmeTek, *DigiBase, 12-pin PMT tube bases with Integrated Bias Supply, Preamplifier, and MCA (with Digital Signal Processing for NaI Spectroscopy)*, Oak Ridge, EUA, 2005.
- [90] Canberra Industries, Inc., *Osprey, Universal Digital MCA Tube base for Scintillation Spectrometry*, Meriden, EUA, 2010.
- [91] J. Sáez Vergara y E. Correa Garcés, «Sistema DINARAD para la medida radiológica dinámica en exteriores,» CIEMAT, Madrid, 2007.
- [92] J. Sáez Vergara y E. Correa Garcés, «Sistema para la caracterización dinámica de emisiones de fotones de baja energía en grandes superficies,» de *XI Congreso de la Sociedad Española de Protección Radiológica*, Tarragona, 2007.
- [93] NavCom Technology, Inc., «SF-2050 GPS Products Users Guide,» NavCom Technology, Inc., Redondo Beach, CA (EUA), 2002.
- [94] National Marine Electronics Association, «NMEA 0183 v 4.0,» National Marine Electronics Association, Severna Park, 2008.
- [95] National Geospatial Intelligence Agency, «Department of Defence World Geodetic System 1984. Its Definition and Relationships with Local Geodetic Systems,» National Geospatial Intelligence Agency, Arnold, Mo, 2014.
- [96] Canberra Industries, Inc., «Genie 2000 Gamma Acquisition & Analysis,» Canberra Industries, Meriden, 2003-2013.
- [97] J. Sáez Vergara y C. Pérez Jiménez, «Programa informático para la medida dinámica simultánea de espectrometría gamma y posición geográfica,» CIEMAT, Madrid, 2006-2008.
- [98] J. Sáez Vergara y E. Correa Garcés, «Sistema ESTARAD para la medida radiológica estática en exteriores,» CIEMAT, Madrid, 2007.
- [99] E. Correa Garcés y J. Sáez Vergara, «Dosímetro digital AT 1123,» CIEMAT, Madrid, 2007.
- [100] E. Correa Garcés y J. Sáez Vergara, «Toma de muestras superficiales inalteradas de suelos,» CIEMAT, Madrid, 2007.
- [101] Canberra Industries, Inc., *InSpector 2000 DSP Portable Spectroscopy Workstation*, Meriden, EEUU: Canberra Industries, 2004.
- [102] E. Correa Garcés y J. Sáez Vergara, «Perfil radiológico de testigos de los sondeos y Manual de Operación.,» CIEMAT, Madrid, 2008.
- [103] E. Correa Garcés y J. Sáez Vergara, «Calibración del equipo Mini-FIDLER para la medida

- de la distribución de actividad de ^{241}Am en testigos de sondeos,» CIEMAT, Madrid, 2009.
- [104] J. Sáez Vergara y E. Correa Garcés, «Determinación de Am-241 en muestras de suelo inalteradas con detectores FIDLER,» CIEMAT, Madrid, 2008.
- [105] J. Sáez Vergara, G. Piña Lucas, E. Correa Garcés, E. Magro Lozano, D. Burgos García y C. Sancho Llerandi, «Método rápido para la estimación del contenido de Am-241 en muestras inalteradas de suelos y testigos de sondeos,» de *XII Congreso Nacional de la Sociedad Española de Protección Radiológica*, Alicante, 2009b.
- [106] J. Sáez Vergara y A. Aragón del Valle, «Actividad de transuránicos en las fracciones granulométricas de los suelos de Palomares,» CIEMAT, Madrid, 2010.
- [107] A. Aragón del Valle, M. Antón Mateos y J. Sáez Vergara, «Fraccionamiento granulométrico de muestras de suelo mediante su tamizado secuencial en seco,» CIEMAT, Madrid, 2009.
- [108] Canberra Industries Inc., «Facon 5000 HPGe-Based Radionuclide Identifier,» Canberra Industries Inc., Meriden, EEUU, 2011.
- [109] Ortec, Advanced Measurement Technology Inc, «Detective-EX/DX ® Portable Neutron and Gamma Identifiers. Operator's Manual,» Ortec, Advanced Measurement Technology Inc., Oak Ridge, EEUU, 2010.
- [110] ORTEC, Advanced Measurement Technology, Inc, «MAESTRO ® Multichannel Analyzer (MCA) Application Software,» ORTEC, Advanced Measurement Technology, Inc, Oak Ridge, 2008.
- [111] International Organization for Standardization, «Test sieves - Technical requirements and testing - Part 1: Test sieves of metal wire cloth,» International Organization for Standardization, Ginebra, Suiza, 2000.
- [112] W. Hummel, G. Anderegg, L. Rao, I. Puigdomènech y O. Tochiyama, Chemical Thermodynamics of compounds and complexes of U, Np, Pu, Am, Tc, Se, Ni and Zr with selected organic ligands, vol. NEA Thermochemical Database (TDB) project , Issy-les-Moillieux, Francia: OECD Nuclear Energy Agency, 2005.
- [113] C. Guéneau, C. Chatillon y B. Sundman, «Thermodynamic modelling of the Plutonium-Oxygen system,» *Journal of Nuclear Materials*, vol. 378, nº 3, pp. 257-272, 2008.
- [114] H. Okamoto, «O-Pu (Oxygen-Plutonium),» *Journal of Phase Equilibria and Diffusion*, vol. 30, nº 6, pp. 663-664, 2009.
- [115] M. Paffett, «Actinide Oxides,» *Actinide Research Quarterly*, vol. 2nd Quarter 2004, pp. 1-32, 2004.
- [116] J. Haschke, H. Thomas y L. Morales, «Surface and Corrosion Chemistry of Plutonium,» *Los Alamos Science*, nº 26, pp. 252-273, 2000.
- [117] J. Martz, J. Haschke y J. Stakebake, «A mechanism for plutonium pyrophoricity,» *Journal of Nuclear Materials*, nº 210, pp. 130-142, 1994.
- [118] US Department of Energy, «Assessment of Plutonium Storage. Safety issues at Department of Energy Facilities,» US Department of Energy, Washington DC, 1994.
- [119] Department of Energy, «Assessment of Plutonium storage safety issues at the Department of Energy facilities,» Department of Energy, Washington DC, EEUU, 1994.
- [120] A. Joseph, P. Gustafson, I. Russell, E. Shuert, H. Volchok y A. Tamplin, «Sources of radioactivity and their characteristics,» de *Radioactivity in the marine environment*, Washington DC, National Academy of Sciences, 1971, pp. 6-41.
- [121] I. Puigdomènech, «Chemical Equilibrium Diagrams,» [En línea]. Available: <http://sourceforge.net/projects/eq-diagr/>. [Último acceso: 15 julio 2015].
- [122] D. Nordstrom, L. Plummer, T. Wigley, T. Wolery , J. Ball, E. Jenne, R. Basset, D. Crerar, T. Florence, B. Fritz , M. Hoffman , G. Holdren , G. Lafon, S. Mattigod, R. McDuff, F. Morel, M. Reddy, G. Sposito y J. Thraikill, «A comparison of computerized chemical models for equilibrium calculations in aqueous systems,» *American Chemical Society*, vol. Series 93, pp. 587-892, 1979.

- [123] M. Pourbaix, Atlas of electrochemical equilibria in aqueous solutions, Segunda Edición en inglés ed., Houston, EEUU: National Association of Corrosion Engineers, 1974.
- [124] International Commission on Radiation Units and Measurements, «Gamma-Ray Spectrometry in the Environment,» International Commission on Radiation Units and Measurements, Bethesda, MD (EUA), 1994.
- [125] Grove Engineering Inc., «Microshield Verification and Validation Report,» Grove Engineering Inc., Lynchburg, VA (EUA), 1996.
- [126] K. Hart, W. Duffy, K. Higley, C. Marianno y C. Moss, «Predicting instrument detection efficiency when scanning point and small area radiation sources,» *Health Physics*, vol. 84, nº 5, pp. 616-625, 2003.
- [127] G. Piña, M. Rodríguez, J. Gascón, E. Magro, E. Lara y J. Sáez, «Caracterización radiológica de muestras de terrenos de Palomares. Radiological Characterization of Palomares soil samples,» CIEMAT, Madrid, 2009.
- [128] J. Sáez Vergara y G. Piña Lucas, «Determination of ²⁴¹Am activity in unaltered soil samples with FIDLER and Ge Gamma spectrometers,» CIEMAT, Madrid, 2009b.
- [129] J. Sáez Vergara, G. Piña Lucas, E. Correa Garcés y E. Magro Lozano, «Determination of ²⁴¹Am activity in unaltered soil samples with FIDLER and Ge gamma spectrometers,» CIEMAT, Madrid, 2009.
- [130] J. Sáez Vergara, R. Rodríguez Jiménez y E. Correa Garcés, «Calibration methods for in situ gamma spectrometry applied in radiation protection and dosimetry,» de *Full papers of the 11th International Congress of the International Radiation Protection Association*, Madrid, 2004.
- [131] Ortec, Advanced Measurement Technology Inc, «ISOTOPIC-32 Advanced Software Solution to Gamma-Ray Waste Assay, V 3.0,» Ortec, Advanced Measurement Technology Inc, Oak Ridge, EEUU, 2008.
- [132] H. Beck, J. DeCampo y C. Gogolak, «In situ Ge(Li) and NaI(Tl) Gamma-ray Spectrometry,» U.S Atomic Energy Commission, Nueva York, EEUU, 1972.
- [133] K. Miller y P. Shebell, «In situ Gamma-ray Spectrometry. A Tutorial for environmental radiation scientists.,» Department of Energy, Nueva York, EEUU, 1995.
- [134] Golden Software Inc., «Surfer, Surface Mapping System, versión 9.11.947,» Golden Software Inc, Golden, EEUU, 2010.
- [135] R. Sibson, «A Brief Description of Natural Neighbor Interpolation,» de *Interpreting multivariate data*, V. Barnett, Ed., New York City, John Wiley and Sons, 1981, pp. 21-36.
- [136] U.S. Environmental Protection Agency, «Developing Spatially Interpolated Surfaces and Estimating Uncertainty,» U.S. Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, 2004.
- [137] ENUSA Industrias Avanzadas, «Asistencia Técnica para la realización del mapa para la vigilancia radiológica superficial en el área global de Palomares (Almería),» ENUSA Industrias Avanzadas, Madrid, 2007.
- [138] Proinsa, «Asistencia técnica de la UTPR de Proinsa para el control radiológico superficial de las Zonas 2,3 y 6 de Palomares (Almería),» Proinsa, Madrid, 2008.
- [139] L. Avial Bell, «Inspección mediante GEORADAR (GPR) en Palomares-Almería para el Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT).,» Condor Georadar, Madrid, 2007.
- [140] E. Correa Garcés y J. Sáez Vergara, «Dosis externa procedente de radiación natural, niveles de radionucleidos naturales en el suelo y su variabilidad (Almería).,» CIEMAT, Madrid, 2009.
- [141] E. Correa Garcés y J. Sáez Vergara, «Estimación de la tasa de dosis externa debida a la presencia de transuránidos en el suelo superficial en Palomares,» CIEMAT, Madrid, 2008.
- [142] E. Suárez Mahou, «Proyecto MARNA. Mapa de radiación gamma natural,» Consejo de Seguridad Nuclear, Madrid, 2000.

- [143] ENUSA Industrias Avanzadas, «Reconocimiento del subsuelo en las Zonas 2, 3 y 6 de Palomares (Almería). Informe final de los trabajos.» ENUSA, Madrid, 2008.
- [144] Golden Software Inc., «Voxler 3D Data Visualization, Versión 1.1.1716,» Golden Software Inc., Golden, EEUU, 2006.
- [145] J. Tiktin, «Movimiento de tierras,» Colegio de Ingenieros de caminos, canales y puertos, Madrid, 1997.
- [146] C. Papelis, R. Jacobson, F. Miller y L. Shaulis, «Evaluation of technologies for volume reduction of Plutonium-contaminated soils from the Nevada Test Site.» US Department of Energy, Las Vegas, EEUU, 1996.
- [147] J. Sáez Vergara, E. Correa Garcés, D. Burgos García y M. Lanzas Sánchez, «Plan de Rehabilitación de Palomares. Propuesta preliminar.» CIEMAT, Madrid, 2010a.