UNIVERSITAT POLITÈCNICA DE CATALUNYA

Instituto de Técnicas Energéticas de la Universidad Politécnica de Cataluña, dentro del programa de Doctorado "Ingeniería Nuclear"

CONTRIBUCIÓN A LA CARACTERIZACIÓN DE AEROSOLES RADIACTIVOS DERIVADOS DEL RADÓN

Autor: Arturo Vargas Drechsler
Director: Xavier Ortega Aramburu

CAPÍTULO III

SISTEMAS DE MEDIDA DE LA CONCENTRACIÓN DE RADÓN Y DE SUS DESCENDIENTES

III.1 Introducción

Los sistemas de medida utilizados en los estudios del radón, pueden ser clasificados en función de las magnitudes a determinar. En este sentido se pueden distinguir dos grandes grupos: equipos de medida de la concentración de radón y equipos de medida de la concentración de sus descendientes. Dentro de estos últimos se pueden considerar aquellos que miden la concentración total y los que analizan el espectro dimensional.

En una primera parte de este capítulo se resumen los principales equipos de medida de la concentración de radón y sus descendientes con el objeto de situar los equipos desarrollados en este trabajo que se describen en el capítulo V.

La segunda parte del capítulo se dedica a los equipos de análisis del espectro dimensional de los descendientes del radón. En este sentido, las distintas técnicas se clasifican en función de la zona del espectro del dimensional que se pretende determinar. Así, como consecuencia del distinto comportamiento físico de las partículas en función de su tamaño, los equipos se clasifican en los que determinan la moda de acumulación (aprovechando las fuerzas inerciales) y en los que se interesan por el espectro dimensional de la fracción libre (aprovechando las fuerzas brownianas o de difusión). Entre las dos modas extremas se encuentra la de nucleación. También hay sistemas de determinación de esta zona en los que intervienen los dos tipos de fuerzas mencionados. En cuanto a los equipos de medida de la moda de acumulación existen algunos desarrollos comerciales de gran complejidad y calidad que se describirán brevemente.

Se realiza una exposición más detallada de los sistemas de medida del espectro dimensional de los descendientes en estado libre por estar todavía en fase de desarrollo y por su gran repercusión en el cálculo de la dosis, y ser de especial interés en los objetivos de este trabajo.

Finalmente, y en relación con los métodos experimentales de la determinación del espectro dimensional de los descendientes del radón, se presentan las distintas técnicas utilizadas en el análisis de los datos obtenidos con algoritmos de deconvolución. La estimación del espectro dimensional, a partir de los datos obtenidos con los equipos de medida, comporta la resolución de un sistema de ecuaciones mal condicionado cuya solución debe ser analizada con especial interés. Esta situación es principalmente importante en las medidas efectuadas con equipos basados en el proceso de difusión, puesto que las pendientes de las curvas de penetración en función del tamaño de las partículas son muy pequeñas provocando una gran incertidumbre en las determinaciones analíticas.

III.2 Técnicas de medida de la concentración de radón y descendientes

Los equipos utilizados para la medida de la concentración del gas radón pueden dividirse en dos categorías en función del tiempo de integración de la medida: equipos con periodos largos de exposición, que van de unos días a algunos meses, tales como detectores de **adsorción de radón en carbón activado**, detectores de **trazas de partículas α en plásticos** (LR-115, Makrofol y CR-39) y detectores basados en la **descarga eléctrica** de un aislante (Electretes). Por otra parte se pueden considerar aquellos sistemas que realizan medidas en continuo, con tiempos de integración que van de algunos minutos a horas. Mientras los de la primera categoría se destinan principalmente a la realización de campañas de medida para la caracterización radiológica de recintos cerrados, los sistemas de medida en continuo se utilizan principalmente en los estudios de correlación de la concentración de radón con parámetros medioambientales y en la localización de fuentes de radón. Para la medida de la concentración de radón en continuo en recintos cerrados se distinguen tres sistemas: **deposición electrostática de iones** de Po-218$^+$ en la superficie de un detector de semiconductor (Porstendörfer y col. 1980), **cámara de ionización** (Baltzer y col. 1992) y **cámara de centelleo** de SZn (celda de Lucas) (Scheibel y col. 1979). Una descripción de las distintas técnicas de medida y, en mayor detalle de los detectores de trazas, se puede encontrar en Durrani e Ilic 1997.

Los detectores basados en las trazas depositadas en películas pueden ser utilizados para la determinación de la concentración de los descendientes de radón (Dörschel y Piesch 1993). Sin embargo, debido a una mejora en la precisión de la medida, es más común realizar un análisis mediante espectrometría alfa de un filtro por el que se ha hecho pasar el aire, tal como se describe en el apartado V.2.2.

III.3 Técnicas de medida del espectro dimensional de las modas de nucleación y acumulación

Para la medida de la distribución dimensional en actividad de la moda de acumulación se dispone de equipos comerciales que suelen ser **impactores inerciales**. Estos equipos clasifican el tamaño de las partículas según su inercia (masa o tamaño si se consideran de la misma densidad y forma). En ellos se provoca cambios bruscos de las líneas de corriente de un flujo de aire ocasionando que las partículas que se salen de las líneas de corriente se depositen sobre un filtro que es analizado posteriormente. El problema que presentan estas técnicas es su dificultad en la clasificación de partículas por debajo del diámetro de unos 40 nm (moda de nucleación), para las cuales se requieren grandes velocidades que permitan evitar la influencia del movimiento de difusión. Existen en proyecto de desarrollo algunos impactores capaces de trabajar a muy baja presión y permitir así la medida de la zona de nucleación. No obstante, para estos tamaños es más común utilizar los métodos de difusión tales como los tamices metálicos que se analizan en el apartado siguiente.

Otros equipos comerciales para la medida del espectro dimensional de estas modas son los **clasificadores electrostáticos**. La ventaja de estos equipos radica en que permiten medir el tamaño de partículas hasta 5 nm y su inconveniente mayor es que miden el espectro dimensional en número de partículas pero no en función de su actividad. Otra ventaja adicional de los clasificadores electrostáticos es que permiten realizar medidas en continuo, mientras que en los impactores deben analizarse un conjunto de filtros para cada punto de medida. Finalmente pueden utilizarse equipos comerciales basados en las técnicas de difusión, si bien no tienen la precisión de los anteriores debido a que las curvas de penetración, al ser de pendiente menor, tienen una pobre resolución. Sin embargo, pueden llegar a medir los tamaños más pequeños de partículas.

III.4 Técnicas de medida del espectro dimensional de los descendientes del radón en estado libre

Las técnicas de medida del espectro dimensional de los descendientes en estado libre están basadas en el movimiento Browniano de estas partículas cuyo parámetro característico es el coeficiente de difusión, D, como se ha analizado en el apartado II.3.5. Los equipos utilizados para medir el tamaño de partículas en esta zona del espectro son principalmente **los tamices metálicos y los tubos de difusión**. Se utilizan en menor medida los lechos granulares de difusión. Estas técnicas de medida (CEC 99) se encuentran en fase de desarrollo y verificación, presentando como inconveniente principal la dificultad de su calibración mediante partículas de tamaño conocido.

Siempre que existe un gradiente espacial de la concentración de partículas se produce el fenómeno de la difusión como consecuencia del incesante impacto que ejercen las moléculas del gas sobre las partículas al seguir aquellas un movimiento aleatorio. La corriente de difusión se produce en el sentido de alta a baja concentración. La corriente neta de partículas, J, en el sentido de las bajas concentraciones es según la primera ley de difusión de Fick:

$$J = -D\frac{\partial N}{\partial x} \tag{III.1}$$

donde x es la dirección de la difusión, N es la concentración de partículas y D es el coeficiente de difusión, que ha sido tratado en el apartado II.3.5.

Cuando se produce el contacto entre una partícula de aerosol y una superficie cualquiera, aquella queda adherida y no puede desprenderse sin aporte de energía. En los estudios de deposición por difusión de partículas en paredes se considera que la concentración de partículas en la pared es igual a cero y por tanto, existe siempre un gradiente de concentración en las superficies que provoca un flujo continuo de partículas hacia ella. Tanto los tamices metálicos como los tubos de difusión se basan en este proceso físico de retención de partículas que dependerá del grado de difusión de éstas.

III.4.1 Distribución de penetraciones en tamices metálicos

La ecuación que mejor determina la penetración de partículas a través de los tamices metálicos fue desarrollada y verificada por Cheng y Yeah 1980 y Cheng y col. 1980. El modelo propuesto permite efectuar el cálculo de la penetración de la partícula a través del tamiz en función de los parámetros del tamiz y de la velocidad del aire en la boca de aspiración. Se define la penetración de un tamiz o de un tubo de difusión como el número de partículas que salen respecto del que entran. La penetración, P, se obtiene de la siguiente ecuación:

$$P = \exp\left[-\frac{4\alpha n w E_T}{\pi(1-\alpha)d_f}\right] \qquad \text{(III.2)}$$

donde:

n es el número de tamices dispuestos en serie
d_f es el diámetro del hilo del tamiz
w es el grosor del tamiz
α es la fracción de volumen sólido = $(m_A/\rho_f)/(A \cdot w)$
m_A es la masa del tamiz de área A
ρ_f es la densidad del material de la tela (7800 kg m^{-3} para telas metálicas)
E_T es la eficiencia de retención de un solo hilo = $E_D+E_I+E_R+E_{DR}$

La eficiencia de retención de un hilo del tamiz se expresa como la suma de eficiencias de difusión E_D, intercepción E_R, impacto E_I y intercepción-difusión E_{DR}. De acuerdo con la teoría del modelo de retención de partículas en filtros (Kirsch y Fuchs, 1967 y Kirsch y Stechkina, 1978), la eficiencia debida a la difusión puede escribirse como:

$$E_D = 2.7\, Pe^{-\frac{2}{3}} \qquad \text{(III.3)}$$

donde $Pe=d_f\, U/D$, es el número de Peclet, D es el coeficiente de difusión de una partícula de diámetro d_p y U es la velocidad del aire en la boca de aspiración. El factor 2.7 de la expresión anterior se obtiene experimentalmente a partir de la teoría de retención de partículas en filtros (Kirsch y Fuch, 1967). Para partículas inferiores a un tamaño de 100 nm la retención por difusión domina sobre el resto de mecanismos, que pueden ser despreciados sin cometer error significativo.

Las eficiencias de retención debidas a los mecanismos de intercepción y de impacto deben de ser consideradas en la determinación de la penetración de la partícula a partir de un tamaño de unos 100 nm. Las ecuaciones para estas eficiencias propuestas por Reineking y Porstendörfer 1986 son:

$$E_R=f(R)/(2\cdot Ku) \quad (III.4)$$
$$E_I=I\cdot St/(2\cdot Ku) \quad (III.5)$$
$$E_{DR}=1.24\ (Ku\cdot Pe)^{-1/2}\ R^{2/3} \quad (III.6)$$

donde:

$f(R)=(1+R)^{-1} - (1+R)+2\ (1+R)\ln(1+R)$

$I= (29.6-28\ \alpha^{0.62})\ R^2 - 27.5\ R^{2.8}$

$R=d_p/d_f$ se denomina parámetro de intercepción

$Ku=-0.5\ln(2\ \alpha/\pi) + 2\ \alpha/\pi - 0.75 - (\alpha/\pi)^2$, es el número de Knudsen

$St= (\rho_p\ d_p^2\ C)/(9\ \mu\ d_f)$, es el número de Stokes

ρ_p es la densidad de la partícula (densidad media del orden de 1400 kg m^{-3})

C es el factor de corrección de Cunningham

μ es la viscosidad del aire (1.83 10^{-5} kg m^{-1} s^{-1} para el aire a 20 °C)

La ecuación del cálculo de la penetración (III.2) es válida para números de Reynolds referenciados al hilo del tamiz inferiores a 1 (Emi y col. 1982). Se define este número de Reynolds como, $Re= (U\ \rho\ d_f)/\mu$ donde ρ es la densidad del aire de valor 1.205 kg m^{-3} a 20 °C y 1 atmósfera de presión. Diversos autores han realizado verificaciones experimentales de esta teoría con diámetros de partículas de aerosoles monodispersos de tamaño mínimo de 4 nm (Scheibel y Porstendörfer 1986, Yeh y col. 1982, Reineking y Porstendörfer 1986 y Yamada y col. 1988). Yeh y col. 1982, y Reineking y Porstendörfer 1986 mostraron que la ecuación anterior puede utilizarse con valor máximo de la fracción sólida en volumen de 0.35.

La verificación de esta teoría para partículas de diámetro inferior a 4 nm es de gran dificultad debido, en primer lugar, a la problemática de generar aerosoles monodiespersos de tamaño tan pequeño. Una segunda problemática que se presenta se debe a que para estos tamaños debe considerarse la heterogeneidad en la geometría del tamiz, por estar formado por un entrelazado de hilos que componen el mallado de la tela metálica. Por tanto, dicha teoría, si bien es utilizada para determinar el espectro dimensional de la fracción libre no está verificada para partículas de tamaño inferior a 4 nm. La publicación que ofrece mayor información sobre el comportamiento de partículas de tamaños inferiores a 4 nm en los tamices metálicos es la tesis doctoral de Ramamurthi 1989.

La manera más cómoda para caracterizar un tamiz o una serie de tamices es el diámetro de corte al 50 %, d_p (50 %). Se define d_p(50 %) como aquel diámetro de partícula cuya penetración a través del tamiz o serie de tamices es del 50 %. Si sólo se tiene en cuenta en el transporte de partículas el mecanismo de difusión es posible derivar una ecuación que permite determinar dicho parámetro de una forma sencilla. En ese caso, la penetración puede escribirse así (Ramamurthi y Hopke 1989):

$$P=\exp\left[-\frac{4\,2.7}{\pi}\,(KVF)^{-2/3}\,D^{2/3}\right] \quad (III.7)$$

donde:

$$KVF = \frac{U}{WF^{1.5}} \quad \text{(III.8)}$$

se denomina parámetro de velocidad de hilo ($cm^2\ s^{-1}$),

$$WF = \frac{\alpha\ w}{(1-\alpha)\cdot d_f^{5/3}} \quad \text{(III.9)}$$

se denomina factor de hilo ($cm^{-2/3}$).

Si se utiliza una aproximación log-lineal para el coeficiente de difusión la ecuación de la penetración de partículas (III.7) se obtiene una ecuación simple para determinar $d_p(50\ \%)$

$$d_p(50\%)(nm) = 10^7 \cdot \exp\left[-\frac{32.193 + \ln(KVF)}{1.957}\right] \quad \text{(III.10)}$$

ecuación válida para valores comprendidos entre $2.5\ 10^{-4} < KVF < 0.40$ (Ramamurthi y Hopke 1989). Si se utilizan un número I de tamices en serie el valor de KVF es:

$$KVF = \frac{U}{\left[\sum_{j=1}^{I} WF_j\right]^{1.5}} \quad \text{(III.11)}$$

La ecuación para la determinación de $d_p(50\ \%)$ es útil para el diseño de la geometría y caudal de aire de paso por el tamiz o serie de tamices, de manera que una vez determinadas sus características puede obtenerse la ecuación de la penetración teniendo en cuenta todos los mecanismos de eficiencia de retención según la ecuación (III.2).

III.4.2 Distribución de penetraciones en tubos de difusión

En un tubo de difusión se hace circular un gas por su interior a una cierta velocidad de manera que las partículas pequeñas que se encuentran suspendidas en aquél tienen una cierta probabilidad de ser transportadas hacia la pared del tubo, debido a su movimiento Browniano caracterizado por el coeficiente de difusión de la partícula, y quedar retenidas por aquella. Por tanto, una partícula alcanzará la pared y quedará adherida a ella en función de dos características: a) el perfil de velocidades del fluido en el interior del tubo y b) el coeficiente de difusión de las partículas. En un tubo de difusión el perfil de velocidades a la entrada es plano y se va desarrollando como consecuencia de su viscosidad hasta alcanzar el típico perfil parabólico en tubos cilíndricos. La longitud de tubo donde se está desarrollando el perfil de velocidades, L_E, puede calcularse con la siguiente expresión:

$$L_E = \alpha R \, Re \tag{III.12}$$

donde α es un parámetro cuyo valor ha sido estimado en un rango comprendido entre 0.06 y 0.15 (en Ingham 1984 se presentan resumen de estos valores), R es el radio del tubo y Re es el número de Reynolds del tubo, Re= $2U_M R/\nu$, donde U_M es la velocidad del aire a la entrada, $\nu = \mu/\rho$ es la viscosidad cinemática del aire, de valor 0.15 $cm^2 \, s^{-1}$ a 20 °C y 1 at.

La ecuación de transporte de masas en estado estacionario que gobierna la concentración de partículas, C, en un gas radiactivo que se mueve por el interior de un tubo recto cilíndrico se describe según la siguiente ecuación en derivadas parciales:

$$v\frac{\partial C}{\partial r} + u\frac{\partial C}{\partial z} = D\left(\frac{1}{r}\frac{\partial C}{\partial r}\left(r\frac{\partial C}{\partial r}\right) + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2}\right) + q - \lambda C \tag{III.13}$$

donde q es la tasa de formación y λ es la constante de desintegración del elemento radiactivo. En la expresión anterior se asume simetría cilíndrica y que el coeficiente de difusión D es constante. Se utilizan coordenadas cilíndricas (r,z) en las que el eje del tubo está situado a r=0. El campo de velocidades viene representado por su componente radial y axial (v, u). Para la determinación de las componentes de la velocidad se resuelven las ecuaciones del momento de Navier-Stokes (III.15 y III.16) y la ecuación de la continuidad (III.14) de manera que se disponen de tres ecuaciones para resolver las dos velocidades y el término de presión que aparece en las ecuaciones del momento. Para un fluido Newtoniano, despreciando la disipación debido a los efectos viscosos y suponiendo que el aire es incompresible, las ecuaciones anteriores en coordenadas cilíndricas se expresan de la siguiente manera:

$$\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial v}{\partial r} + \frac{v}{r} = 0 \tag{III.14}$$

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u\frac{\partial u}{\partial z} + v\frac{\partial u}{\partial r} = -\frac{1}{\rho}\frac{\partial p}{\partial z} + \nu\left(\frac{1}{r}\frac{\partial u}{\partial r}\left(r\frac{\partial u}{\partial r}\right) + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2}\right) \tag{III.15}$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + u\frac{\partial v}{\partial z} + v\frac{\partial v}{\partial r} = -\frac{1}{\rho}\frac{\partial p}{\partial r} + \nu\left(\frac{1}{r}\frac{\partial v}{\partial r}\left(r\frac{\partial v}{\partial r}\right) - \frac{v}{r^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2}\right) \tag{III.16}$$

La solución completa de estas ecuaciones debe realizarse por métodos numéricos, sin embargo, con el objetivo de encontrar soluciones analíticas a la ecuación III.13, es usual que el término de transporte de masa por difusión en la dirección del eje axial se considere despreciable frente al término de convección. Este hecho se pone de manifiesto cuando el número de Peclet (Pe=$2U_M R/D$ donde R es el radio interior de tubo) es mucho mayor que la unidad tal como determinaron Tan y Hsu 1975. De forma cuantitativa Tan y Hsu 1975 estimaron que el error que se cometía para valores de Pe superiores a 100 era inferior al 0.5 %. También es común asumir que la velocidad radial v es igual a cero y la velocidad axial u se represente por un perfil de velocidades plano (perfil de velocidades de entrada) o parabólico (perfil de velocidades desarrollado). Finalmente, también suelen despreciarse los fenómenos de formación y desaparición de especies, de manera que en la ecuación III.13 sólo se considera convección axial y difusión radial.

Por ser de interés para este trabajo se presentan las soluciones analíticas para las condiciones simplificadas con los dos perfiles de velocidades mencionados en el párrafo anterior así como la utilización de las técnicas numéricas. El parámetro a determinar es la concentración media de partículas que sale del tubo, C_S, de manera a poder calcular el parámetro de penetración, P. Si $C_L(r)$ es la concentración de partículas para z=L y la concentración de partículas a la entrada es C_o, constante para todos lo valores de r, se define la penetración de partículas para un tubo con la siguiente expresión:

$$P = \frac{C_S}{C_O} = \frac{\int_0^R C_L(r)u(r,z)2\pi r dr}{C_O U_M \pi R^2} \qquad \text{(III.17)}$$

Es común en las soluciones analíticas de la ecuación (III.17) proponerlas en función del parámetro $\Delta = DL/4U_MR^2$. Para flujos parabólicos una solución analítica utilizada comunmente para todos los valores de Δ es la obtenida por Ingham1975:

$$P = 0.819\exp(-14.63\Delta) + 0.0976\exp(-89.22\Delta) + 0.0325\exp(-228\Delta) + 0.0509\exp\left(-125.9\Delta^{2/3}\right) \qquad \text{(III.18)}$$

Para flujos de tipo plano una solución analítica para todos los valores de Δ también la obtuvo Ingham 1975:

$$P = \frac{4}{\alpha_1^2}\exp\left(-4\alpha_1^2\Delta\right) + \frac{4}{\alpha_2^2}\exp\left(-4\alpha_2^2\Delta\right) + \frac{4}{\alpha_3^2}\exp\left(-4\alpha_3^2\Delta\right) + \left[1 - 4\left(\frac{1}{\alpha_1^2} + \frac{1}{\alpha_2^2} + \frac{1}{\alpha_3^2}\right)\right]\exp\left[\frac{8\Delta^{1/2}}{\pi^{1/2}\left(1 - 4\left(\frac{1}{\alpha_1^2} + \frac{1}{\alpha_2^2} + \frac{1}{\alpha_3^2}\right)\right)}\right] \qquad \text{(III.19)}$$

donde los parámetros $\alpha 1$, $\alpha 2$ y $\alpha 3$ son los ceros de las funciones de Bessel de primera especie de orden cero (2.40482, 5.52007 y 8.65372 respectivamente). Sustituyendo y arreglando, la expresión anterior queda como sigue:

$$P = 0.6917\exp(-23.13\Delta) + 0.1313\exp(-121.9\Delta) + 0.0534\exp(-299.6\Delta) + 0.1237\exp\left(-36.50\Delta^{1/2}\right) \qquad \text{(III.20)}$$

En las publicaciones existentes sobre el tema se han encontrado soluciones analíticas que tienen en cuenta el desarrollo del perfil de velocidades y que fueron obtenidas por Ingham 1984 y Martonen y col. 1996. Estas expresiones son útiles para flujos en desarrollo siempre que el número de Pe sea mucho mayor que el número de Re, de tal manera que el desarrollo del perfil de concentraciones es mínimo. Este hecho no sucede en los tubos de difusión utilizados en la medida del espectro dimensional de los descendientes en estado libre ya que la velocidad del aire en el tubo es baja y el coeficiente de difusión elevado, y por tanto, las expresiones obtenidas no se pueden utilizar para la medida de dicho espectro dimensional. Así, la manera de determinar el campo de velocidades en los tubos de difusión es resolviendo numéricamente las ecuaciones de Navier-Stokes.

En cuanto a los métodos numéricos cabe destacar el trabajo realizado en su tesis doctoral por Malet 1997 en el que se utiliza un programa comercial de cálculo de dinámica de fluidos basado en la técnica de los elementos finitos (TRIOEFF) y que fue desarrolado por el CEA (Commissariat a l'Energie Atomique). Otro método que se ha aplicado para solucionar las ecuaciones anteriores es la de elementos finitos (Sasse y col. 1994). Según se presenta en el trabajo de Malet 1997 los dos métodos obtienen valores bastante similares aunque no se hayan podido verificar experimentalmente. Ambos métodos han sido aplicados a la determinación del coeficiente de difusión del radón con la técnica de los dos filtros (Thomas y LeClare 1970). En el capítulo IV se presentan algunos de los resultados obtenidos por Malet 1997 aplicados como contraste del método desarrollado en el presente trabajo.

III.5 Técnicas de reconstrucción del espectro dimensional

Es de gran interés analizar la forma de reconstruir el espectro dimensional de los descendientes del radón en estado libre. Estas técnicas también pueden ser utilizadas por los sistemas de medida inerciales destinados a medir la moda de acumulación.

Las técnicas de medida del espectro dimensional de los descendientes en estado libre se basan en el conocimiento de la distribución de penetraciones de las partículas en el sistema de medida utilizado. Dicha distribución representa la probabilidad de penetración en función del tamaño de las partículas, y deben posibilitar el que de la medida de la actividad de los descendientes que han conseguido penetrar a través del sistema de filtrado se obtenga la máxima información del espectro dimensional de las partículas. El cálculo del espectro dimensional de las partículas a partir de los datos obtenidos con el uso de una serie de tamices metálicos y tubos de difusión es un típico ejemplo de problema de inversión de datos. La formulación matemática de este problema se expresa mediante la ecuación integral de Fredholm de primera especie, que es:

$$Z(x) = \int_{x_{min}}^{x_{max}} p(x,y) f(y) dy + \varepsilon \qquad \text{(III.21)}$$

donde Z(x) es la medida realizada (por ejemplo la actividad de los descendientes que han atravesado el tamiz metálico o el tubo de difusión), p(x,y) es la respuesta del instrumento de medida a la información deseada (función respuesta: distribución de penetraciones de los tamices metálicos y tubos de difusión), f(y) es la función de distribución que se desea obtener (espectro dimensional de las partículas), y ε es el error del instrumento de medida.

La obtención de la información deseada a partir de la ecuación anterior puede llegar a convertirse en un trabajo realmente complicado especialmente en aquellos casos en los que la solución es *indeterminada* (gran número de soluciones pueden explicar los datos obtenidos) y que el sistema esté *mal propuesto* (las soluciones son muy sensibles a los errores).

El método más usual para resolver la integral anterior consiste en expresarla en forma de una serie de ecuaciones lineales que relacionan los datos obtenidos con los correspondientes valores discretos de la función de distribución incógnita y de la respuesta del sistema de medida:

$$Z(i) = Z_O \sum_{j=1}^{J} p(i,j) f(j) \qquad \text{(III.22)}$$

En un conjunto complejo, formado por tamices metálicos y tubos de difusión que componen el sistema de medida desarrollado en este trabajo, Z(i) es el número de partículas por unidad de volumen de aire aspirado que atraviesan el tamiz o tubo i, Z_O es la concentración total de partículas del aire aspirado, i=1,...I representa el módulo de medida, ya sea un tamiz o un tubo, j=1,...J es el número que indica el orden del diámetro medio de cada intervalo dimensional de la función de distribución del tamaño de las partículas, p(i,j) es el valor de la fracción de penetración de la tela o tubo i para el tamaño de partícula j, y f(j) es el valor de la fracción de la cantidad de partículas en el intervalo del tamaño j.

Como ya se ha comentado la solución correcta del sistema de ecuaciones estará supeditada a los errores en la medida, a la débil dependencia con el diámetro de la partícula de las distribuciones de penetraciones de los tamices metálicos y tubos de difusión (curvas de pendiente pequeña), y al error de cuadratura en la aproximación de la integral de Fredholm. En estas condiciones se denomina al sistema de ecuaciones del tipo *mal condicionado* (Cooper y Spielman, 1976, Busigin y col. 1980) y es justamente lo que sucede en los sistemas de medida del espectro dimensional del diámetro de las partículas. Rara vez se obtienen resultados aceptables de la solución de estos sistemas de ecuaciones por métodos numéricos directos (Phillips, 1962). En efecto, estas soluciones tienden a ser oscilatorias e incluso negativas y por tanto, no válidas desde un punto de vista físico. En los últimos años se han utilizado distintas técnicas de aproximaciones no lineales para la solución de este problema. Las que se mencionan a continuación son métodos utilizados tradicionalmente y que además participaron en la intercomparación llevada a cabo por diversos grupos europeos y americanos en este trabajo, en el marco del programa Europeo RARAD (apartado V.3.4.5): el método SIMPLEX (Nelder y Mead, 1965), el método comunmente conocido como Twomey (Twomey, 1975), el método de expectación-maximización o mejor conocido como EMAX (Maher y Laird, 1985), y el método de estimación del valor extremo o EVE (Hopke y Paatero 1990).

Como se analizará en el capítulo de resultados el motivo por el que los algoritmos de iteración no lineales no funcionan correctamente en el caso de distribuciones bimodales se debe a que el criterio utilizado para obtener los valores de las sucesivas iteraciones depende de los parámetros de la distribución. Este criterio suele ser el de la suma del cuadrado de las diferencias entre los datos medidos y la aproximación de los datos estimados. Para que los algoritmos no lineales funcionen correctamente las aproximaciones de los datos estimados se deben ir acercando monótonamente hasta alcanzar el mínimo absoluto. Sin embargo, cuando se tienen distribuciones bimodales se pueden encontrar grandes zonas con mínimos locales que llevan a resultados incorrectos. Por esta razón, se ha desarrollado un método que se basa en probar todas las distribuciones posibles de una manera aleatoria y utilizar una técnica para ir eliminando distribuciones sin un consumo excesivo de tiempo. A esta técnica se le ha denominado Randomwalk (Butterweck y col. 1998). En el capítulo V se describe la implementación de esta técnica desarrollada en este trabajo.

III.6 Conclusiones

Se ha presentado, de forma sintetizada, el estado del arte de las técnicas de medida utilizadas en los estudios de radón que comprende: sistemas de medida de la concentración de radón, sus descendientes, del espectro dimensional de la fracción adherida y del espectro dimensional de los descendientes en estado libre. Es de especial interés resaltar la dificultad que presenta la medida del espectro dimensional de los descendientes en estado libre ya que se trata de la medida del tamaño cercano al de los átomos de ^{218}Po. Los métodos utilizados están basados en el uso de tamices metálicos y tubos de difusión, aunque se ha de señalar que su aplicación a estos tamaños no ha sido contrastada experimentalmente. Mientras las distribuciones de penetraciones de partículas de los tamices metálicos están basadas en técnicas semi-empíricas que no permiten la contrastación de su correcto funcionamiento por debajo de un tamaño de aproximadamente de 1 nm, las distribuciones de penetraciones de los tubos de difusión se obtienen normalmente de la solución analítica de la ecuación de transporte de partículas en el interior de tubos cilíndricos. Finalmente, se ha destacado la dificultad que presenta la deconvolución de los datos obtenidos con el sistema de análisis del espectro dimensional de los descendientes en estado libre debido a que debe resolverse un sistema de ecuaciones mal condicionado. A este respecto se han presentado las distintas técnicas utilizadas para intentar solventar dicha dificultad.