

## Un Modelo de Migración Vertical del $^{137}\text{Cs}$

*M. Casas-Ruiz, M. Barrera, F. Feria, C. Corredor y R. A. Ligeró*

Departamento de Física aplicada  
Universidad de Cádiz  
11510 Puerto Real (Cádiz)

### Introducción

A partir del año 1954 el  $^{137}\text{Cs}$  empieza a ser detectable a nivel global como consecuencia de los ensayos nucleares llevados a cabo, dichas pruebas se intensifican entre los años 1958-1959 produciendo una mayor concentración de este radionúclido, hasta que, posteriormente, en 1963 se produce un máximo que es el responsable de la mayor parte de la actividad de  $^{137}\text{Cs}$  detectada. En 1986, el accidente de la central nuclear de Chernobyl, vierte a la atmósfera una gran cantidad de productos entre los que se encuentra el  $^{137}\text{Cs}$ , si bien en menor cantidad que en las épocas anteriormente citadas.

Podría pensarse que determinando el perfil de actividad de una muestra y asignando las correspondientes fechas a los máximos encontrados en ese perfil tendríamos resuelta una técnica de fechado útil a partir de la segunda mitad del siglo XX, sin embargo tras obtener los correspondientes perfiles de actividad de  $^{137}\text{Cs}$  en multitud de zonas de la bahía de Cádiz, se observa la dificultad que esa hipotética técnica presenta, debido a que la forma de esos perfiles impide la detección clara de los máximos históricos y, por tanto, de su asignación.

Varios son los motivos que conducen a esa situación:

1. Dinámica marina: fijación relativamente pobre del radioelemento en los sedimentos, en comparación con la acumulación que tiene lugar en ambientes menos energéticos, como lagos o glaciares.
2. Baja actividad de  $^{137}\text{Cs}$ : próxima a los límites de detección experimental, produce una incertidumbre que oscurece la forma de los perfiles, y que puede llegar a ocultar la presencia de los máximos.
3. Movilidad vertical del  $^{137}\text{Cs}$ : el flujo difusivo de  $^{137}\text{Cs}$  en sedimentos es un fenómeno que se produce como consecuencia de la acción combinada de varios procesos de transporte:
  - difusión molecular del radioelemento en el agua intersticial del medio sedimentario
  - movimiento de partículas de tamaño reducido ( $<1 \mu\text{m}$ ) que previamente han incorporado  $^{137}\text{Cs}$

- actividad biológica de los organismos bentónicos que provoca una migración de  $^{137}\text{Cs}$
4. Alta solubilidad del  $^{137}\text{Cs}$ : retrasa la incorporación del mismo al sedimento tras su llegada al medio acuático tras el “fallout” atmosférico.

Por lo tanto la correcta interpretación de los perfiles obtenidos para el  $^{137}\text{Cs}$  requiere el desarrollo de un modelo matemático que tenga en cuenta los aspectos anteriormente señalados.

## PLANTEAMIENTO DEL MODELO

### *Ecuación de difusión–sedimentación*

El perfil radiactivo de una columna sedimentaria puede describirse mediante una ecuación de transporte, que representa los fenómenos físicos implicados en la incorporación y posterior evolución del radioelemento en el sedimento.

En la figura 1 se ha representado una lámina de agua bajo la cual se produce la sedimentación. El sedimento se extiende desde un valor  $z=0$  que corresponde a la interfase entre el medio acuático y el sedimento hasta valores crecientes de la profundidad,  $z>0$ .

Si se designa por  $\tilde{a}(z,t)$  la actividad por unidad de volumen, la actividad total,  $A$ , del radioelemento bajo estudio, contenida en un volumen cilíndrico  $V$  de sedimento, comprendido entre dos profundidades fijas  $a$  y  $b$  ( $a<z<b$ ), para un instante  $t$  puede escribirse en la forma:

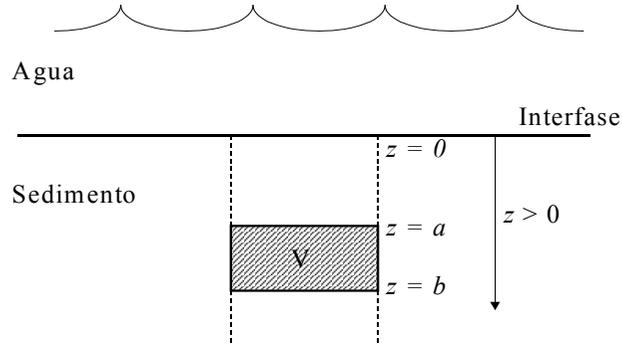
$$A = A(t) = \int_V \tilde{a}(z,t) dV = S \int_a^b \tilde{a}(z,t) dz \quad (1)$$

donde  $S$  es la superficie de la base del cilindro. Puede observarse que la actividad por unidad de volumen sólo depende, espacialmente, de la profundidad,  $z$ , dado que se han supuesto condiciones de homogeneidad horizontal.

La dependencia temporal de la actividad  $A$  obedece a dos fenómenos:

- Flujo de actividad,  $J$ , a través de la superficie que limita el volumen considerado  $V$ , y,
- Desintegración radiactiva en el interior del mismo.

Por razones de simetría, el flujo sólo tiene componente en la dirección  $z$ ,  $J(z, t)$ , de manera que el intercambio de actividad entre el volumen considerado y el medio se produce a través de las bases del cilindro.



**Figura 1. Representación del volumen  $V$  del medio sedimentario, que contiene la actividad  $A$  del radioelemento.**

La evolución de la actividad en el interior de  $V$  sigue la ley de decaimiento radiactivo, siempre que no exista ninguna fuente interior al volumen. Éste es el caso de los radioelementos artificiales, que una vez introducidos en el medio ambiente, decaen siguiendo la ley de desintegración,  $A(t) = A_0 e^{-\lambda t}$  y, por tanto, la variación temporal total de la actividad,  $A$ , en el volumen considerado puede escribirse como suma de dos términos representativos, cada uno de ellos de los citados fenómenos, así:

$$\frac{dA}{dt} = \left. \frac{dA}{dt} \right|_{\text{Frontera}} + \left. \frac{dA}{dt} \right|_{\text{Volumen}} = S [J(a, t) - J(b, t)] - \lambda A \quad (2)$$

ecuación que puede reescribirse, teniendo en cuenta la expresión (1), y escribiendo el término de flujo en forma integro-diferencial,

$$\int_a^b \frac{\partial \tilde{a}}{\partial t} dz = - \int_a^b \frac{\partial J}{\partial z} dz - \lambda \int_a^b \tilde{a} dz \quad (3)$$

que, a su vez, permite deducir la ecuación de evolución genérica de  $\tilde{a}$ ,

$$\frac{\partial \tilde{a}}{\partial t} = - \frac{\partial J}{\partial z} - \lambda \tilde{a} \quad (4)$$

En el sistema estudiado, el flujo de actividad tiene dos componentes:

1. Flujo advectivo  $J_A$ . La sedimentación produce un flujo de actividad, como consecuencia del transporte de materia en la dirección  $z$ . Si se designa por  $v$  a la *tasa de sedimentación o velocidad de sedimentación lineal*, el flujo advectivo puede escribirse como  $J_A = v\tilde{a}$ . La velocidad de sedimentación depende tanto de la profundidad  $z$  de la capa, como del tiempo  $t$ , es decir  $v=v(z,t)$ .
2. Flujo difusivo  $J_D$ . La existencia, en el sedimento, de agua intersticial permite la difusión molecular del radioelemento en cualquier dirección en el seno del medio sedimentario. Dicha difusión depende de la constante de distribución  $k_D$ , así como de la porosidad del sedimento (Berner, 1980). Además, el movimiento browniano de partículas sólidas de tamaño microscópico, así como la actividad biológica, contribuyen al transporte de materia, y por tanto a un flujo de actividad, similar al que produce la difusión molecular.

En general, el transporte difusivo, englobando a todos los fenómenos que lo origina, se caracteriza por el movimiento en dirección aleatoria de los átomos. Dicho movimiento produce un flujo neto en dirección al gradiente de actividad, cuyo sentido va de las zonas de mayor densidad a las de menor densidad de actividad. Por tanto, en nuestro caso, se tiene  $J_D = -D(\partial\tilde{a}/\partial z)$ , siendo  $D$  la constante de difusión, que engloba a todos los procesos susceptibles de producir transporte difusivo. Dado que dichos procesos pueden cambiar en el espacio y en el tiempo, la constante de difusión es función de la profundidad y el tiempo,  $D = D(z,t)$ .

El flujo total de actividad en un medio sedimentario que presenta sedimentación y difusión simultáneamente es la suma de los flujos advectivo y difusivo, esto es,  $J = J_A + J_D$ . Sustituyendo en la ecuación (4) se obtiene, para la evolución de la actividad por unidad de volumen

$$\frac{\partial\tilde{a}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z}\left(D\frac{\partial\tilde{a}}{\partial z}\right) - \frac{\partial}{\partial z}(v\tilde{a}) - \lambda\tilde{a} \quad (5)$$

Si se realiza la hipótesis de que la velocidad de sedimentación y el coeficiente de difusión son independientes de la profundidad y del tiempo, lo que equivale a

emplear para ambos sus valores promedios en el intervalo de tiempo  $t$  y espesor  $z$  considerado, la ecuación de evolución de la actividad se simplifica

$$\frac{\partial \tilde{a}}{\partial t} = D \frac{\partial^2 \tilde{a}}{\partial z^2} - v \frac{\partial \tilde{a}}{\partial z} - \lambda \tilde{a} \quad (6)$$

En general, la velocidad de sedimentación  $v$  depende de la profundidad, puesto que la compactación, que consiste en la reducción del espesor del sedimento a medida que éste se encuentra a mayor profundidad, disminuye la velocidad de sedimentación. No obstante, como la presencia del  $^{137}\text{Cs}$  se limita a los estratos más superficiales, la compactación es reducida, de manera que la hipótesis de  $v$  promedio es aceptable.

La velocidad de sedimentación  $v$  puede variar con el tiempo, como consecuencia del cambio de aporte de materia depositada sobre la interfase. La hipótesis de velocidad constante es aceptable cuando se estudia un intervalo de tiempo bastante mayor que la escala temporal asociada al fenómeno que produce la sedimentación. Por tanto, cuando el aporte de materia está fundamentalmente vinculado a mareas o a las crecidas de los cursos fluviales, parece razonable admitir que un tiempo de varias decenas de años debe ser suficiente para usar la velocidad de sedimentación promedio.

Asimismo, en la difusión del radioelemento intervienen multitud de factores, y no es fácil determinar las condiciones físicas, químicas o biológicas que establecen una difusión básicamente estacionaria (independiente del tiempo) y homogénea (independiente de la profundidad) pero, a la vista de la variación limitada que experimentan, en el espesor bajo estudio, los parámetros fundamentales que regulan la difusión, como la porosidad, mineralogía y materia orgánica del sedimento, también parece razonable admitir un coeficiente  $D$  esencialmente constante con respecto a la profundidad. No obstante, esta aproximación ha de considerarse con precaución, ya que uno de los fenómenos que se incluye de forma genérica en la difusión es la mezcla biológica, y ésta depende, en general, de la profundidad. La actividad biológica generada por los organismos bentónicos (que en el entorno consisten en algunas especies de anélidos, crustáceos y moluscos), así como la fijación de la vegetación marina en la interfase sedimentaria, produce una alteración de la estratificación sedimentaria, que se produce preferentemente en las capas más superficiales. El efecto de esa bioturbación superficial se conoce tradicionalmente como *capa de mezcla*, que consiste en la homogeneización total, o parcial, de la actividad de los radioelementos en una capa de determinado espesor, y una reducción rápida de dicha homogeneización a mayor profundidad. La modelización del efecto de la capa de mezcla ha sido realizada por diversos autores (Robbins et

al., 1977) suponiendo que, en dicha capa, el valor del coeficiente de difusión  $D$  es elevado, disminuyendo hasta un valor constante o nulo a mayor profundidad.

Además, el coeficiente de difusión  $D$  es independiente del tiempo cuando el intercambio del radioelemento entre las fases presentes en el medio sedimentario, regulado por la constante de distribución  $k_D$ , alcanza el equilibrio termodinámico (Kirchner, 1998). Algunos autores consideran que el  $^{137}\text{Cs}$ , presenta un comportamiento de fijación “lento” en los minerales de la arcilla (Chamard et al., 1993), con lo cual, su difusión puede disminuir con el tiempo en este tipo de sedimentos. La hipótesis de difusión  $D$  promedio tendrá validez, por tanto, en el caso de que la fracción del elemento que sufre la fijación sea limitada, o en el caso de que el tiempo de relajación de dicho proceso sea suficientemente grande, en comparación con el tiempo durante el cual el elemento permanece en el sedimento.

En definitiva, la aproximación fundamental del modelo propuesto, velocidad de sedimentación  $v$  y coeficiente de difusión  $D$  independientes del tiempo y de la profundidad, es coherente con la información experimental disponible, que consiste en los perfiles de  $^{137}\text{Cs}$  en un único instante de tiempo. Para un estudio posterior de la dependencia temporal sería necesario obtener los perfiles de actividad una vez transcurrido un tiempo del orden de la propia semivida del  $^{137}\text{Cs}$  (30 años) a partir del presente estudio (1998), a fin de evaluar el decaimiento radiactivo del radioelemento en los sedimentos.

#### *Solución de la ecuación de evolución mediante el método de diferencias finitas*

La ecuación de sedimentación - difusión que describe la evolución de la actividad de una sustancia radiactiva en una columna sedimentaria,  $\tilde{a}(z, t)$ , carece, en general, de soluciones analíticas. Se propone la resolución de dicha ecuación mediante el empleo de un método de diferencias finitas, y la posterior determinación de la solución numérica a través de un algoritmo, que ejecutará un programa informático.

La función incógnita,  $\tilde{a}(z, t)$ , está definida en un dominio espacial y temporal  $z \geq 0$ ,  $t \geq 0$ . Si se genera una malla de valores discretos en dicho dominio definiendo  $z_p = p \delta z$ ,  $t_q = q \delta t$ , donde  $\delta z, \delta t$  representan, respectivamente, el espaciado espacial y temporal de la malla, mientras que  $p$  y  $q$  son números enteros que proporcionan la posición en la citada malla ( $p, q \geq 0$ ). Mediante la notación simplificada  $\tilde{a}(z_p, t_q) = \tilde{a}_p^q$ , es posible escribir las derivadas parciales discretizadas como (Haberman, 1987).

$$\left. \frac{\partial \tilde{a}}{\partial t} \right|_p^q = \frac{\tilde{a}_p^{q+1} - \tilde{a}_p^q}{\delta t}$$

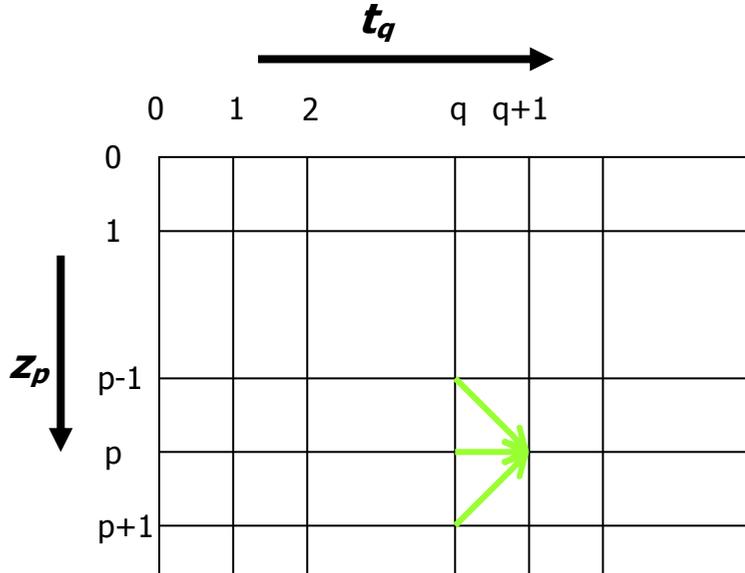
$$\frac{\partial \tilde{a}}{\partial z} \Big|_p^q = \frac{\tilde{a}_p^q - \tilde{a}_{p-1}^q}{\delta z} \quad (7)$$

$$\frac{\partial^2 \tilde{a}}{\partial z^2} \Big|_p^q = \frac{\tilde{a}_{p+1}^q - 2\tilde{a}_p^q + \tilde{a}_{p-1}^q}{\delta z^2}$$

Sustituyendo las derivadas en la ecuación (6) y despejando el término  $\tilde{a}_p^{q+1}$  se obtiene

$$\tilde{a}_p^{q+1} = \tilde{a}_p^q (1 - \lambda \delta t) + D \frac{\delta t}{\delta z^2} (\tilde{a}_{p+1}^q - 2\tilde{a}_p^q + \tilde{a}_{p-1}^q) - v \frac{\delta t}{\delta z} (\tilde{a}_p^q - \tilde{a}_{p-1}^q) \quad (8)$$

La ecuación anterior describe la evolución temporal de la actividad, dado que proporciona el valor de  $\tilde{a}$  en un instante de tiempo  $t_{q+1}$  en función del valor de  $\tilde{a}$  en un tiempo anterior  $t_q$ , lo que puede escribirse simbólicamente como  $\tilde{a}(t_{q+1}) = f(t_q)$ . La figura 2 representa esquemáticamente la transmisión de información contenida en la ecuación 8. La actividad a la profundidad  $z_p$  en el instante de tiempo  $t_{q+1}$  se determina en función de la actividad en el instante de tiempo anterior  $t_q$ , a las profundidades  $z_{p+1}, z_p, z_{p-1}$ .



**Figura 2. Representación esquemática de la resolución la ecuación de evolución de la actividad, mediante el método de diferencias finitas.**

El valor de la actividad en  $z = 0$  ( $p = 0$ ) no se determina mediante la ecuación de evolución, sino que se establece como condición de contorno,  $\tilde{a}_{p=0}^q = c(t)$ , la cual, representa el fenómeno de interacción de la interfase con el medio acuático. También ha de establecerse la condición de contorno para  $z$  suficientemente grande, que en el caso de un radioelemento artificial se reduce a  $\tilde{a}(z \rightarrow \infty, t) = 0$ , es decir, la actividad del radioelemento debe anularse a partir de determinada profundidad, dado que dicho radioelemento se incorpora desde la interfase, y posee una capacidad limitada de migración una vez que se integra en el medio sedimentario.

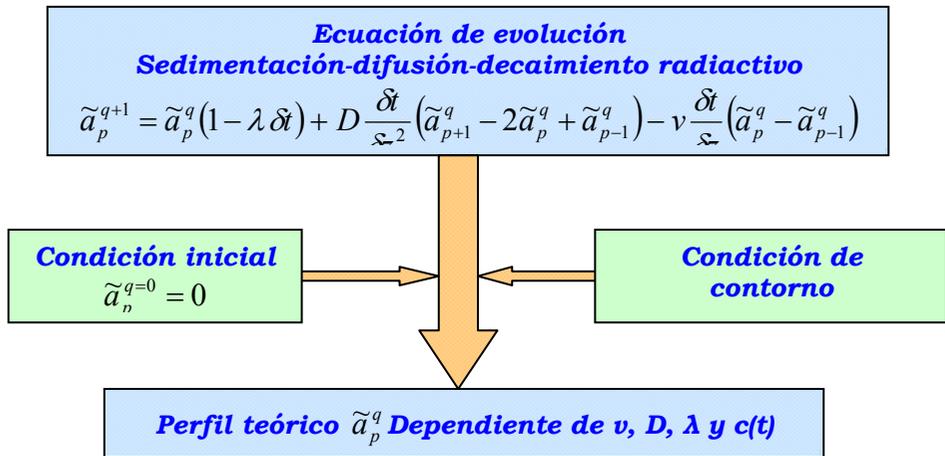
Por otra parte, la resolución de la ecuación de evolución requiere el conocimiento del perfil inicial de actividad,  $\tilde{a}(z_p, t = 0)$ . En caso de que el sistema no haya recibido ningún aporte de actividad en un tiempo anterior a  $t = 0$ , la condición inicial es  $\tilde{a}_p^{q=0} = 0$ . Además, considerando un número suficiente de capas  $z_p$ , la condición inicial reproduce la condición de contorno  $\tilde{a}(z \rightarrow \infty, t) = 0$ , de manera que no es necesario incluir esta última condición de forma implícita en el algoritmo de cálculo de diferencias finitas.

Se propone, por tanto, la determinación del perfil de actividad en un instante de tiempo dado  $t$  mediante la aplicación, en forma iterativa, de la ecuación 8. A partir del perfil inicial,  $t = 0$ , se deducen los sucesivos perfiles desde  $t_1$  hasta  $t_N = t$  ( $N =$  número de iteraciones), teniendo en cuenta la condición de contorno en  $z = 0$  ( $z \rightarrow \infty$ ). La solución dependerá de la velocidad de sedimentación  $v$ , el coeficiente de difusión  $D$ , la constante de desintegración del radioelemento  $\lambda$  (relacionada con la semivida  $T_{1/2}$ ), así como de la condición de contorno impuesta en  $z = 0$  y del instante de tiempo  $t$ . El cuadro 1 resume el algoritmo propuesto.

#### *Condición de contorno en la interfase. Mecanismo de incorporación del $^{137}\text{Cs}$*

Para resolver la ecuación de evolución de la actividad, es necesario conocer la condición de contorno  $c(t)$ , que representa el fenómeno de la incorporación del radioelemento desde el medio acuático. Dicha incorporación se produce a través de la interfase, que es la única vía de acceso del radioelemento al sedimento. El aporte de actividad sobre la interfase, expresado mediante el flujo, es  $J_{z=0} = v c(t)$ .

El instante inicial  $t = 0$  se establecerá como el momento en el que la actividad de  $^{137}\text{Cs}$  empieza a llegar al sedimento, lo que supone, dado el carácter artificial de este radionúclido, la inexistencia previa del citado radioelemento, y por tanto la mencionada condición inicial  $\tilde{a}_p^{q=0} = 0$



**Cuadro 1. Algoritmo genérico propuesto para la resolución de la ecuación de evolución de la actividad en una columna sedimentaria, mediante el empleo del método de diferencias finitas.**

La presencia de  $^{137}\text{Cs}$  en la estratosfera tiene lugar a partir del año 1954. Entre los años 1962 y 1963, se produce el máximo nivel histórico de  $^{137}\text{Cs}$  en la atmósfera. Dado que la actividad de  $^{137}\text{Cs}$  medida en los sedimentos de la Bahía de Cádiz se sitúa muy próxima a los niveles de detección experimental, es posible admitir que los perfiles de actividad sólo reflejan los eventos asociados a la máxima presencia del radioelemento en el medio ambiente. Teniendo en cuenta que el máximo de actividad de los años sesenta representa el 80 % del inventario total de  $^{137}\text{Cs}$  introducido en el medio ambiente, es posible afirmar que el origen de la actividad de  $^{137}\text{Cs}$  en la Bahía de Cádiz es, fundamentalmente, dicho aporte máximo de los años sesenta.

Considerando esta aproximación, se admitirá el año 1963 como fecha inicial,  $t=0$ , en nuestro problema, lo cual implica que la fecha de estudio, en la que se ha efectuado la extracción de muestras (1998), corresponde a  $t=35$  años.

A partir del instante  $t=0$ , el  $^{137}\text{Cs}$  empieza a incorporarse a los sedimentos. El mecanismo de incorporación del  $^{137}\text{Cs}$  en la bahía de Cádiz puede deducirse de los perfiles medidos del mismo.

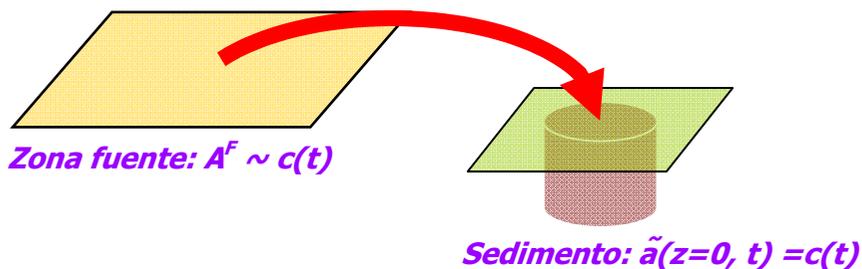
Una primera hipótesis consistiría en la llegada de la actividad a la interfase, poco tiempo después de su caída sobre la hidrosfera. En este caso, el  $^{137}\text{Cs}$  sería absorbido por la materia en suspensión presente en el medio marino, que posteriormente se depositaría en la interfase, o bien, el radioelemento disuelto pasaría directamente a dicha interfase. Todo ello ocurriría en un intervalo de tiempo relativamente corto,  $\Delta t$ , de manera que el flujo de actividad sobre la

interfase,  $J_{z=0} = v c(t)$ , adquiriría un valor no nulo durante un tiempo  $t \leq \Delta t$ , y a continuación se anularía para  $t > \Delta t$ . La posterior sedimentación de material inactivo produciría como resultado un perfil con valores nulos, o muy bajos, de  $^{137}\text{Cs}$  en la interfase, así como un máximo o zona de máxima actividad a determinada profundidad. Este tipo de perfiles proporcionan el método clásico de fechado mediante  $^{137}\text{Cs}$ , consistente en la asignación de la fecha 1963 a la capa de máxima actividad.

Sin embargo, en nuestro caso, los perfiles medidos de  $^{137}\text{Cs}$  muestran, en general, valores de actividad altos desde la interfase,  $z=0$ , hasta una profundidad determinada, lo que indica que la actividad ha llegado, y sigue llegando en la actualidad, de forma continua. Por tanto, no se cumple el modelo de incorporación rápida “post-fallout”, o al menos, ésta no es la causa principal de la presencia de  $^{137}\text{Cs}$  en los sedimentos estudiados.

La forma de los perfiles de  $^{137}\text{Cs}$  encontrados pueden significar que este radioelemento viene incorporado en el sedimento que se deposita continuamente sobre la interfase. Dicho material sedimentario procedería de una zona distinta a la de sedimentación, que denominaremos zona fuente  $F$ , que actúa de trampa en la que previamente se ha acumulado el  $^{137}\text{Cs}$ . La erosión de dicha zona, el transporte y posterior deposición de los sedimentos en el fondo de la Bahía, producen la acumulación de actividad en la interfase de las columnas sedimentarias bajo estudio.

Se trata, por tanto, de un mecanismo de incorporación “lento”, en el que la evolución que experimenta la actividad en la interfase,  $c(t)$ , es consecuencia de la variación global de la actividad fuente  $A^F$ , como se representa en la figura 3. El aporte continuo de  $^{137}\text{Cs}$  que se aprecia en los perfiles de actividad de los sedimentos bajo estudio indica, por tanto, una lenta variación de la actividad de la fuente  $A^F$ .



**Figura 3. Evolución de la actividad en la interfase sedimentaria  $c(t)$ , condicionada por la actividad en la zona fuente  $A^F$ .**

La forma más simple de aporte continuo sería el aporte constante, es decir,  $c(t)=c_0$ , sin embargo, no parece lo más probable en nuestro caso, puesto que la actividad de una fuente natural está sometida a un proceso de disminución continua, atendiendo a dos razones fundamentales:

1. La actividad  $A^F$  decae con la semivida del radioelemento  $T_{1/2}$ .
2. La cantidad de actividad  $A^F$  es limitada y por tanto, a medida que dicha actividad sale de la zona fuente, se reduce con el tiempo.

Es posible definir la constante  $\lambda^S$  que mide la *probabilidad de salida por unidad de tiempo* de la actividad de la zona fuente. Según esta definición, la actividad fuente se reduce con el tiempo de acuerdo con la expresión  $dA^F = -A^F \lambda^S dt - A^F \lambda dt$ .

El término  $-A^F \lambda^S dt$  está asociado a la salida de la actividad de la zona fuente, mientras que  $-A^F \lambda dt$  representa el decaimiento radiactivo, con constante  $\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$ .

La evolución global de  $A^F$  corresponde, por tanto, a un decaimiento exponencial, con una constante total  $\lambda^T = \lambda^S + \lambda$ . Dado que  $\lambda^T > \lambda$ , este decaimiento será, en general, más rápido que el asociado a la desintegración del radioelemento. De hecho, la constante de evolución global define un tiempo característico, denominado *tiempo de aporte*,  $T_{1/2}^T = \ln(2)/\lambda^T$ , menor que la semivida del  $^{137}\text{Cs}$ ,  $T_{1/2}$ .

De forma análoga, la probabilidad de salida  $\lambda^S$  está asociada a un tiempo  $T_{1/2}^S = \ln(2)/\lambda^S$ . La actividad de la fuente  $A^F$  evolucionaría con esa constante si no tuviera lugar el decaimiento radiactivo. Por tanto,  $T_{1/2}^S$  representa el *tiempo de residencia del radioisótopo en la zona fuente*.

La relación entre las constantes de decaimiento,  $\lambda^T = \lambda^S + \lambda$ , conduce a la siguiente relación, entre los correspondientes tiempos característicos

$$T_{1/2}^T = \frac{T_{1/2}^T T_{1/2}^S}{T_{1/2}^T + T_{1/2}^S} \quad (9)$$

Según esta expresión, en caso de que el tiempo de residencia  $T_{1/2}^S$  sea grande en comparación con la semivida del radioelemento,  $T_{1/2}^S \gg T_{1/2}^T$ , la actividad de la fuente evoluciona con un tiempo característico igual a la semivida,  $T_{1/2}^T = T_{1/2}^S$ . En efecto, un tiempo de residencia alto en la zona fuente hace que la pérdida de actividad por eliminación sea despreciable frente al decaimiento radiactivo, que por tanto domina la evolución de  $A^F$ . Por el contrario, un tiempo de residencia corto en comparación con la semivida,  $T_{1/2}^S \ll T_{1/2}^T$ , implicará una evolución total de la actividad controlada por dicho tiempo de residencia  $T_{1/2}^T = T_{1/2}^S \ll T_{1/2}^T$ , ya que, en este caso, el fenómeno predominante en la zona fuente será la pérdida de actividad por eliminación.

Dado que la actividad  $c(t)$  en la interfase del sedimento debe seguir una evolución similar a la experimentada por la actividad de la zona fuente,  $A^F$ , se propone el siguiente valor para la actividad:

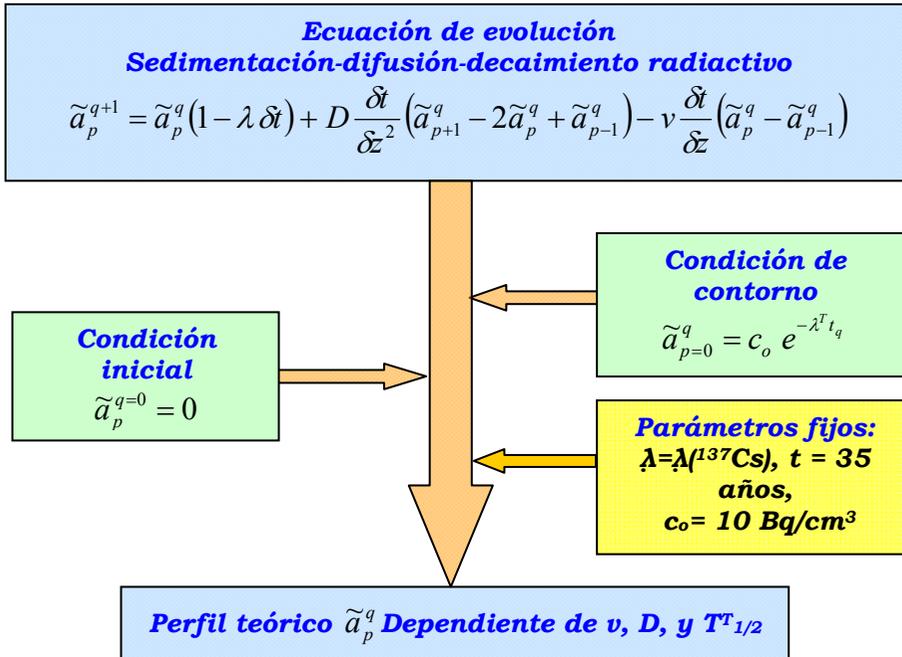
$$c(t) = c_0 e^{-\lambda^T t} = c_0 e^{-(\lambda^S + \lambda) t} \quad (10)$$

Esta expresión constituye una simplificación, dado que sólo tiene en cuenta la acumulación y posterior salida de  $^{137}\text{Cs}$  desde la zona fuente, como consecuencia de un único aporte de actividad. Como ya se ha comentado, este aporte, correspondiente al máximo de 1962-63, representa la práctica totalidad del fallout depositado sobre la zona, pues aunque en principio se podría pensar que el desastre de Chernobyl podría haber introducido un nuevo aporte sobre la zona, nuestros estudios han demostrado que la actividad procedente de Chernobyl es insignificante frente a la que procede de los años sesenta. Por tanto, la expresión (10) representa adecuadamente la condición de contorno de incorporación del  $^{137}\text{Cs}$  a la interfase sedimentaria.

### *Perfiles teóricos de actividad de $^{137}\text{Cs}$*

Con objeto de examinar la evolución vertical de la actividad bajo diferentes circunstancias, se ha determinado la solución de la ecuación de sedimentación-difusión, particularizada para diferentes condiciones de interés.

En primer lugar se ha considerado la semivida del  $^{137}\text{Cs}$ , ya que es el radioelemento a seguir,  $T_{1/2} = 30.2 \text{ años}$ , lo que implica una constante de desintegración  $\lambda = 2.27 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$ . Asimismo, se supone el mecanismo de incorporación lenta, ecuación (10), como condición de contorno, en la cual se ha fijado el valor de  $c_0 = 10 \text{ Bq/cm}^3$ . El valor de  $c_0$  sólo introduce un factor de escala, de manera que no afecta a la forma de las soluciones. Se ha resuelto la ecuación para  $t = 35 \text{ años}$ , transcurrido entre la fechas de deposición del  $^{137}\text{Cs}$  y la de muestreo (1998).



**Cuadro 2. Algoritmo para determinar, mediante diferencias finitas, el perfil actividad de  $^{137}\text{Cs}$  en las columnas sedimentarias, en función de los parámetros del modelo  $v, D, T_{1/2}^T$ .**

El algoritmo de resolución (cuadro 1) queda reducido al algoritmo expuesto en el cuadro 2.

Se ha determinado la solución del algoritmo anterior mediante un PC, utilizando para ello una hoja de cálculo (Microsoft® Excel 97 SR2). La estructura bidimensional de los datos en una hoja de cálculo permite la resolución, mediante una programación adecuada, de la ecuación de evolución (8). Además, es posible seguir de forma cómoda la variación de las soluciones con respecto a los parámetros, así como representar gráficamente los perfiles de actividad. Se han considerado los valores de espaciado de malla  $\delta z = 1 \text{ cm}$ ,  $\delta t = 10^{-2} \text{ años}$ . Dicho espaciado, junto con

el valor estudiado de  $D$  y  $v$ , permite la convergencia exacta de las soluciones (Haberman, 1987).

En la tabla 1 se exponen los valores concretos de la velocidad de sedimentación,  $v$ , coeficiente de difusión,  $D$ , y tiempo de aporte de la fuente,  $T_{1/2}^T$ , que se han utilizado para determinar las soluciones particulares. El valor de dichos parámetros es realista, como se demostrará posteriormente al efectuar el ajuste de los perfiles medidos de  $^{137}\text{Cs}$ .

**Tabla 1. Valores de los parámetros  $v$ ,  $D$ ,  $T_{1/2}^T$ , empleados para calcular el perfil teórico de actividad de  $^{137}\text{Cs}$  en determinadas condiciones particulares.**

	<i>Difusión</i>	<i>Sedimentación</i>	<i>Solución genérica</i>	
$D$ ( $\text{cm}^2/\text{año}$ )	0.25 - 1 - 4	0	0 - 0.1 - 0.5	0 - 0.1 - 0.5
$v$ ( $\text{cm}/\text{año}$ )	0	0.5	0.5	0.5
$T_{1/2}^T$ (años)	$\infty$	$\infty$ - 60 - 30.2 - 15	30.2	15

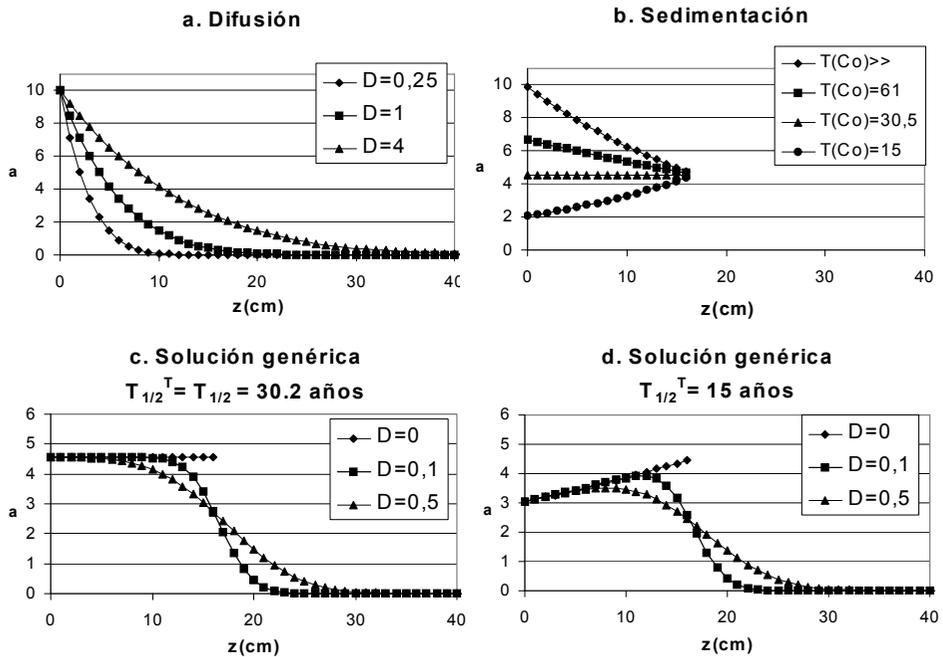
### *Difusión*

El estudio de la difusión se ha efectuado utilizando diferentes valores de  $D$ , así como velocidad de sedimentación nula y tiempo de aporte de la fuente  $T_{1/2}^T = \infty$ . Este tiempo introduce una actividad superficial constante,  $c_0 = 10 \text{ Bq}/\text{cm}^3$ , lo cual, junto con la elección de velocidad de sedimentación nula,  $v = 0 \text{ cm}/\text{año}$ , permite examinar el fenómeno de la difusión, aislándolo del resto de los fenómenos. En la figura 4(a) se han representado los perfiles de actividad obtenidos, apreciándose la forma decreciente característica del fenómeno de la difusión. Dichos perfiles incluyen, además, el decaimiento radiactivo del  $^{137}\text{Cs}$ . Como puede apreciarse, la profundidad alcanzada por el radioelemento aumenta con el coeficiente de difusión. Examinando la profundidad asociada a cualquier valor de la actividad, se observa que dicha profundidad se duplica cuando el coeficiente de difusión se hace cuatro veces mayor. Éste es un hecho característico del flujo difusivo, para el cual, la profundidad de penetración es proporcional a  $(Dt)^{1/2}$  (Krasnov et al., 1990).

### *Sedimentación*

La migración vertical del radioelemento debida únicamente a la sedimentación se ha estudiado utilizando  $D = 0$ ,  $v = 0.5 \text{ cm}/\text{año}$ , así como diversos valores de  $T_{1/2}^T$ . El transporte de la actividad desde la interfase hasta una capa de profundidad  $z$  se produce como consecuencia de la acumulación progresiva de material sobre dicha interfase, y el consecuente movimiento relativo de dicha capa

con respecto a  $z = 0$ . Como se aprecia en la figura 4(b), el flujo de actividad asociado a la sedimentación produce un perfil no nulo en el espesor de sedimento acumulado durante el tiempo  $t = 0-35$  años (1963-1998), en el que se ha producido el aporte del radioelemento. El valor de la actividad a una profundidad  $z$  es igual al valor de dicha actividad en  $z = 0$  para un tiempo anterior  $t = t - z/v$ , corregida por decaimiento radiactivo durante el tiempo de estancia en el sedimento,  $z/v$ . Dado que en  $t = 0$  la actividad para todos los perfiles es la misma,  $\tilde{a} = c_0 = 10 \text{ Bq/cm}^3$ , en todos los casos



**Figura 4. Perfiles de actividad de  $^{137}\text{Cs}$  determinados teóricamente en determinadas condiciones particulares de interés: a. Difusión. b. Sedimentación. c y d. Soluciones genéricas para  $T_{1/2}^T = 30.2$  años ( $= T_{1/2}$ ),  $T_{1/2}^T = 15$  años ( $< T_{1/2}$ ), respectivamente.**

la actividad se reduce al mismo valor en  $z = v t = 18 \text{ cm}$ , lo que produce la convergencia de todos los perfiles en un punto. La actividad en dicho punto de máxima profundidad es  $\tilde{a} \sim 5 \text{ Bq/cm}^3$ , aproximadamente igual a la mitad de su valor inicial, ya que el tiempo transcurrido,  $t = 35$  años, es aproximadamente igual a la semivida del  $^{137}\text{Cs}$ ,  $T_{1/2} = 30.2$  años.

A medida que el tiempo característico del proceso global,  $T_{1/2}^T$ , se hace menor, el aporte de actividad sobre la interfase disminuye más rápidamente, de

manera que los perfiles reducen su nivel de actividad. En el caso de  $T_{1/2}^T = \infty$  (aporte constante sobre la superficie) la actividad en  $z = 0$  es igual a  $c_o = 10 \text{ Bq/cm}^3$ , mientras que en el resto de los casos ( $T_{1/2}^T < \infty$ ) la disminución del aporte con el tiempo hace que la actividad en  $z = 0$  sea menor que  $c_o$ . En caso de que  $T_{1/2}^T = T_{1/2}$ , el perfil de actividad es constante, como consecuencia de que la variación de la actividad en la interfase se produce al mismo ritmo que el decaimiento radiactivo en el seno del sedimento. Por último, si  $T_{1/2}^T < T_{1/2}$ , la actividad en la interfase disminuye a un ritmo mayor que el propio decaimiento radiactivo. Esto hace que las mayores actividades se den en las capas más profundas, en las que el aporte fue mayor cuando se localizaban en la interfase.

### **Solución Genérica**

En caso de que la evolución del radioelemento esté gobernada simultáneamente por los fenómenos de difusión, sedimentación, decaimiento radiactivo y disminución paulatina del aporte en la interfase, el perfil de actividad reflejará dichos fenómenos conjuntamente.

En este modelo, el aporte de actividad procedente de la fuente está regulado por un tiempo igual, o menor, que la semivida del radioelemento. Por ello, se han estudiado los casos  $T_{1/2}^T = 30.2 \text{ años}$  (igual a la semivida) y  $T_{1/2}^T = 15 \text{ años}$  (menor que  $T_{1/2}$ ). La velocidad de sedimentación se ha tomado  $v = 0.5 \text{ cm/año}$ .

En la figura 4(c) se representan los perfiles correspondientes a un tiempo de aporte igual a la semivida,  $T_{1/2}^T = 30.2 \text{ años}$ , utilizando distintos coeficientes de difusión. En las capas más superficiales, el perfil de actividad es constante, dado que la variación temporal del aporte sobre la interfase se produce al mismo ritmo que el decaimiento radiactivo en el seno de la columna sedimentaria. A medida que aumenta la profundidad disminuye la actividad, al producirse el flujo difusivo del radioelemento desde las zonas de mayor a las de menor actividad. Si el coeficiente  $D$  es nulo, el perfil de actividad es constante, ya que en este caso el transporte de actividad se debe, exclusivamente, al flujo advectivo provocado por la sedimentación. Como vemos, el efecto de la difusión suaviza el perfil de actividad.

La difusión es mayor en la discontinuidad del perfil, dado que el gradiente de actividad alcanza en esta zona su máximo valor. Además, el transporte difusivo neto es mayor en las capas profundas, ya que al ser más longevas, el mecanismo de la difusión ha actuado durante más tiempo. En las capas menos profundas adyacentes a la interfase, el gradiente de actividad es menor, lo que unido a la corta edad de estas capas, produce una reducida difusión de la actividad.

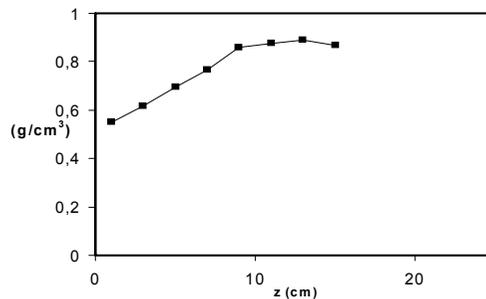
La figura 4(d) representa los perfiles de actividad cuando el tiempo de aporte es menor que la semivida del  $^{137}\text{Cs}$ ,  $T_{1/2}^T = 15 \text{ años}$ . El perfil correspondiente a  $D = 0$  es producto del transporte de actividad, exclusivamente advectivo, unido a la rápida disminución de la actividad en la interfase, que se aprecia en las capas

menos profundas y por tanto más recientes. También en este caso, la difusión produce un flujo desde las zonas de mayor a las de menor actividad. La forma de los perfiles obtenidos como solución genérica de la ecuación de migración es básicamente igual a la forma que presentan los perfiles experimentales de  $^{137}\text{Cs}$  para las columnas de sedimento estudiadas.

#### Actividad de $^{137}\text{Cs}$ por unidad de volumen

La ecuación (6) expresa la evolución de la actividad por unidad de volumen,  $\tilde{a}$ , en lugar de la actividad por unidad de masa,  $a$ . Ello se debe a que el flujo difusivo de actividad es producido por el gradiente espacial de  $\tilde{a}$ . Sin embargo, la actividad de los radioelementos, determinada tras el análisis espectrométrico, se expresa generalmente por unidad de masa,  $a$ . Es posible relacionar ambas magnitudes. En efecto, si una capa de volumen  $V$  contiene una masa de sedimento  $m$ , la actividad total del radioelemento es  $A = \tilde{a} V = a m$ . De aquí, se obtiene la relación  $\tilde{a} = \rho a$ , donde  $\rho$  es la densidad de sedimento en la capa.

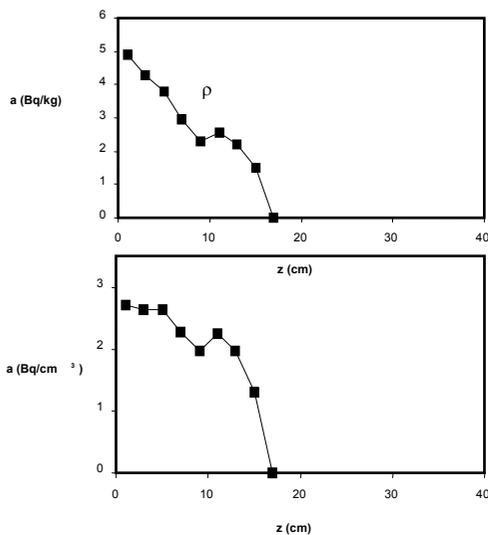
La densidad puede determinarse de forma exacta en nuestras columnas, dado que se conoce la masa de sedimento y el volumen de cada capa. Algunos autores proponen una relación entre la densidad  $\rho$ , y el contenido de agua intersticial,  $w$  (Clifton et al., 1994). Dichas expresiones son aproximadas, dado que requieren el conocimiento de la densidad del sedimento, que se establece como hipótesis.



**Figura 5. Aumento de la densidad de materia sólida en función de la profundidad en la estación V1, como consecuencia de la compactación del sedimento.**

Cuando la densidad de sedimento es constante,  $\rho = cte$ , la relación  $\tilde{a} = \rho a$  permite expresar la ecuación de evolución (6) en función de la actividad por unidad de masa,  $a$ . Cuando la densidad presenta variaciones significativas con respecto a la profundidad  $z$  debe tenerse en cuenta su efecto.

En las columnas de sedimento bajo estudio, las variaciones de  $\rho$  con la profundidad son moderadas, como se aprecia en la figura 5, que representa  $\rho(z)$  en la estación V1. La variación de  $\rho(z)$  transforma el perfil de actividad por unidad de masa en el correspondiente perfil de actividad por unidad de volumen, según  $\tilde{a}(z) = \rho(z) a(z)$ . El efecto de dicha transformación es una distorsión del perfil de actividad por unidad de masa, que se ve relativamente deformado en las capas de mayor densidad, como se aprecia en el caso de la estación V1 (figura 6). Por este motivo la ecuación de evolución se ha planteado y resuelto en términos de actividad por unidad de volumen. La aplicación directa de dicha ecuación en términos de actividad por unidad de masa proporcionaría, en general, valores erróneos de los parámetros del modelo.



**Figura 6.** Comparación de los perfiles de actividad de  $^{137}\text{Cs}$  por unidad de masa y de volumen, en la estación V1.

*Algoritmo de cálculo: Minimización de  $\chi^2$*

La solución de la ecuación de evolución (8), junto con la condición de contorno propuesta (10), depende de cuatro parámetros:  $\nu, D, c_o, T_{1/2}^T$ . Especificando estos parámetros, y aplicando el algoritmo representado en el cuadro 2, se obtiene el perfil de actividad de  $^{137}\text{Cs}$ . Por hipótesis, cada uno de los perfiles de  $^{137}\text{Cs}$  determinado experimentalmente se ha producido según el mecanismo propuesto de incorporación en la interfase y posterior evolución de la actividad en la columna sedimentaria. Se plantea, por tanto, la determinación del valor de los parámetros asociados a cada columna sedimentaria.

Supongamos una columna concreta, en la que se han medido  $N$  capas de sedimento. Denominaremos  $\tilde{a}_p^{EXP}$  a la actividad de  $^{137}\text{Cs}$  por unidad de volumen medida en la capa  $p$ , así como  $\sigma(\tilde{a}_p^{EXP})$  a la incertidumbre asociada a dicha medida, con  $p$  comprendido entre 1 y  $N$ . La determinación teórica del perfil proporciona un conjunto de  $N$  valores de actividad, que depende de los parámetros del modelo, es decir,  $\tilde{a}_p = \tilde{a}_p(v, D, c_o, T_{1/2}^T)$ . La separación entre el perfil experimental y el perfil teórico puede expresarse mediante la suma del cuadrado de las desviaciones ponderadas, es decir

$$\chi^2 = \chi^2(v, D, c_o, T_{1/2}^T) = \frac{1}{(N-4)} \sum_{p=1}^{p=N} \left( \frac{\tilde{a}_p^{EXP} - \tilde{a}_p}{\sigma(\tilde{a}_p^{EXP})} \right)^2 \quad (11)$$

Consideraremos que el valor del conjunto de parámetros  $v, D, c_o, T_{1/2}^T$  asociados a cada columna es aquel que minimiza la función anterior, es decir, admitiremos la solución de mínimos cuadrados. Si el modelo es correcto, la separación entre la predicción de éste y los datos experimentales debe ser del orden de  $\sigma(\tilde{a}_p^{EXP})$ .

Dado que el número de parámetros del modelo es 4, con objeto de normalizar  $\chi^2$ , se ha dividido por el número de grados de libertad,  $(N-4)$ . Con esta definición, si el modelo reproduce adecuadamente los perfiles experimentales de actividad, el valor mínimo de  $\chi^2$  ha de ser próximo a la unidad.

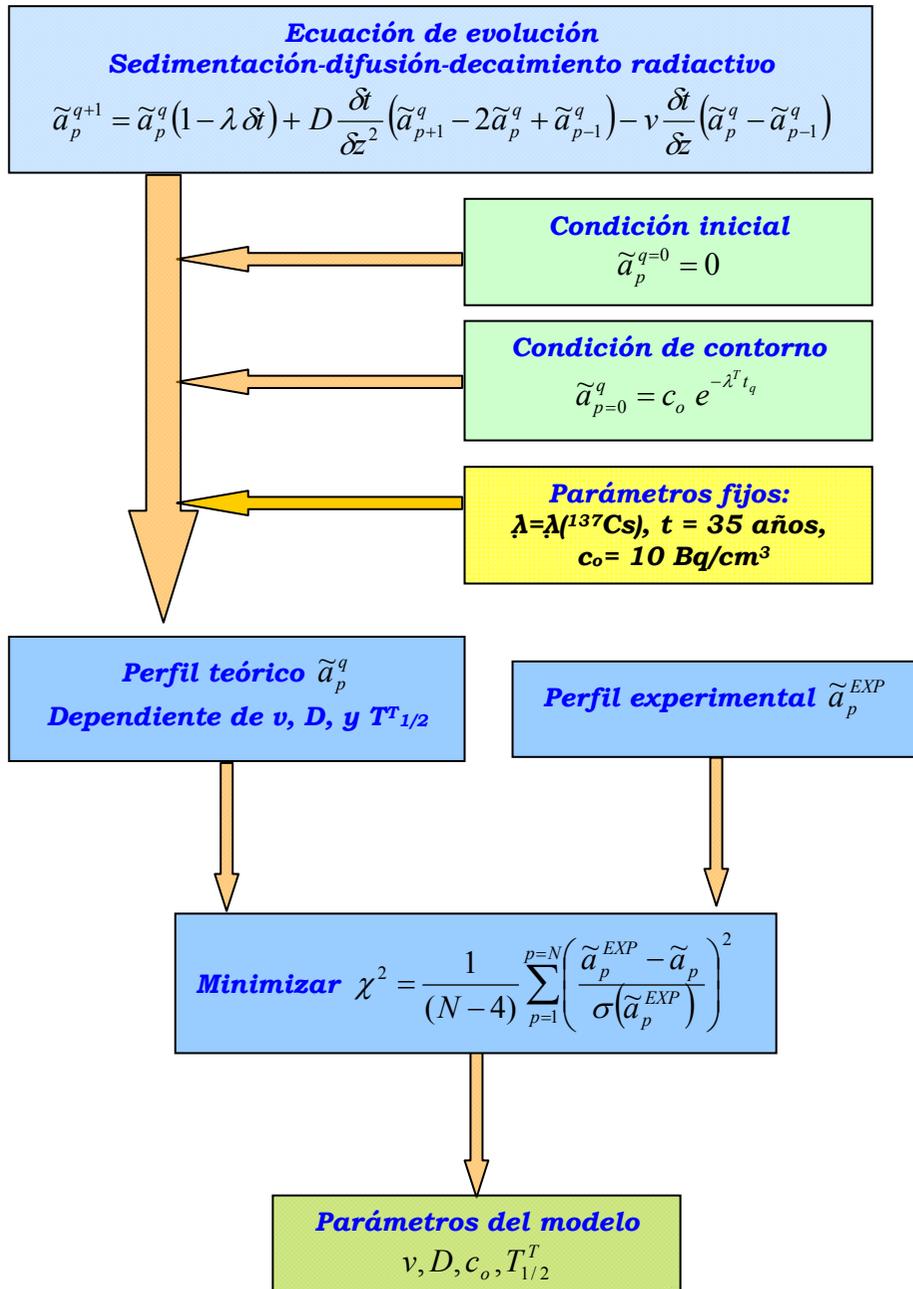
La determinación de los parámetros  $v, D, c_o, T_{1/2}^T$  asociados a cada perfil de  $^{137}\text{Cs}$  se esquematiza en el cuadro 3.

### **Aplicación del modelo. Sedimentación. Comportamiento del $^{137}\text{Cs}$ en la Bahía de Cádiz**

#### *Ajuste de los perfiles de actividad*

Se ha aplicado el modelo propuesto a los perfiles de  $^{137}\text{Cs}$  medidos en un gran número de estaciones de la Bahía Interior (figura 7).

En la tabla 2 se muestran los parámetros  $v, D, c_o, T_{1/2}^T$ , y el coeficiente  $\chi^2$ , determinados tras la minimización de este último, para alguna de las estaciones estudiadas.



Cuadro 3. Algoritmo para la determinación de los parámetros del modelo,  $v, D, c_o, T_{1/2}^T$ , consistente en el ajuste de mínimos cuadrados de la solución de la ecuación de evolución al perfil experimental de  $^{137}\text{Cs}$ .

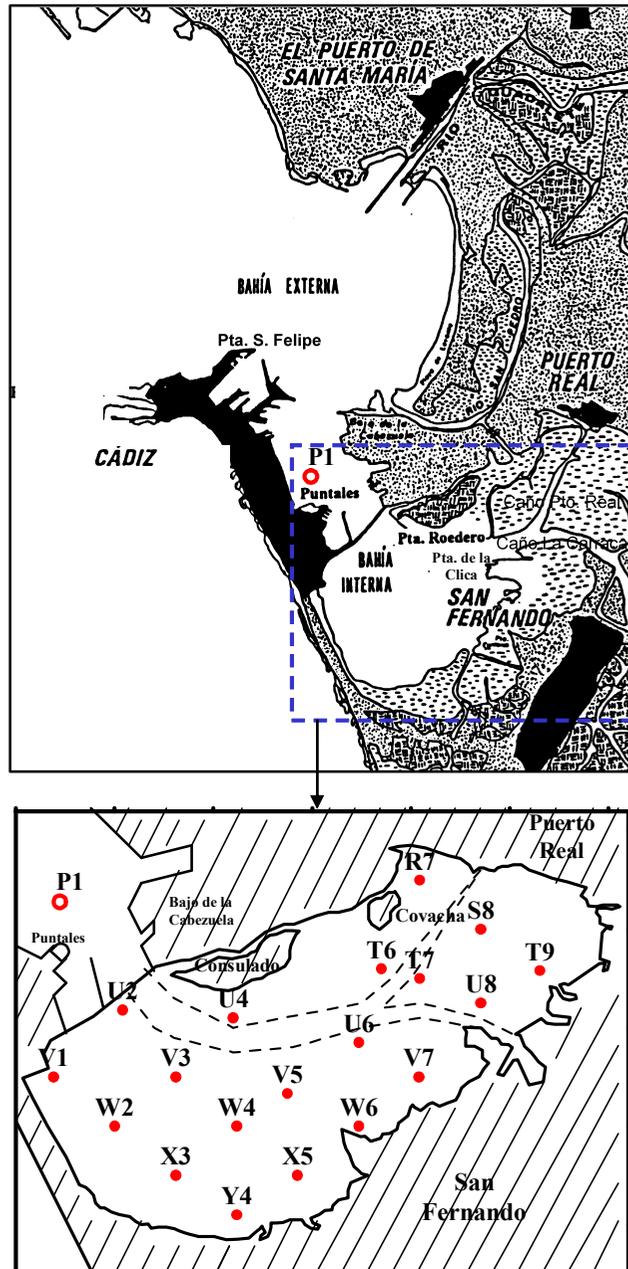


Figura 7. Localización de las estaciones estudiadas.

**Tabla 2.- Valores de los parámetros del modelo,  $v, D, c_o, T_{1/2}^T$ , correspondientes a cada uno de los perfiles de  $^{137}\text{Cs}$  de la Bahía Interior (El valor medio y la desviación típica de los parámetros se ha determinado considerando únicamente las estaciones del saco interno, al objeto de obtener una imagen global de dicho entorno.**

<i>Estación</i>	<i>v (cm/año)</i>	<i>D (cm<sup>2</sup>/año)</i>	<i>c<sub>o</sub> (Bq/cm<sup>3</sup>)</i>	<i>T<sub>1/2</sub><sup>T</sup> (años)</i>	<i>χ<sup>2</sup></i>
<b>P1</b>	0,57	0,50	7,2	30,2	1,2
<b>R7</b>	0,32	0,73	5,0	30,2	1,1
<b>S8</b>	0,23	0,11	4,9	<b>22,3</b>	0,2
<b>T7</b>	0,15	0,27	6,3	30,2	1,1
<b>T9</b>	0,49	0,18	5,9	<b>21,8</b>	0,6
<b>U2</b>	0,26	0,25	5,4	30,2	0,9
<b>U4</b>	0,28	0,12	5,1	30,2	1,1
<b>U6</b>	0,46	0,23	6,1	<b>27,5</b>	0,3
<b>U8</b>	1,58	0,27	11,9	<b>15,4</b>	1,0
<b>V1</b>	0,45	0,11	5,4	30,2	0,8
<b>V3</b>	0,85	0,43	10,7	<b>15,0</b>	1,0
<b>V5</b>	0,24	0,16	4,9	30,2	2,0
<b>V7</b>	0,38	0,05	10,2	<b>20,3</b>	2,2
<b>W2</b>	0,63	0,40	4,9	30,2	0,7
<b>W4</b>	0,45	0,19	7,3	30,2	0,8
<b>W6</b>	0,23	0,23	5,4	30,2	0,9
<b>X3</b>	0,51	0,12	4,6	30,2	1,1
<b>X5</b>	0,39	0,09	5,7	30,2	1,0
<b>Y4</b>	0,51	0,28	2,7	30,2	1,0
<b>Media</b>	0,47	0,24	6,3	---	---
<b>σ</b>	0,32	0,16	2,4	---	---

La figura 8 permite examinar, a modo de ejemplo, el modelo de actividad en alguna de las estaciones.

En una primera aplicación del modelo, se consideró  $T_{1/2}^T$  como parámetro libre ajustable en todas las estaciones. Este parámetro está vinculado a la variación temporal de la actividad en la interfase, de manera que si  $T_{1/2}^T = T_{1/2}$ , es decir, el tiempo de aporte es igual a la semivida del  $^{137}\text{Cs}$ , se produce un perfil constante en la zona de alta actividad. Esta situación tiene lugar cuando el tiempo de residencia del radioelemento en la zona fuente es muy superior a la semivida del radioelemento. Si el tiempo de residencia en la fuente es comparable al tiempo de aporte  $T_{1/2}^T < T_{1/2}$ , lo que produce un perfil creciente en la zona de alta actividad, cuyo mínimo se encuentra en la interfase, como consecuencia de la disminución rápida del aporte de actividad.

En cualquier caso, el efecto provocado por el tiempo  $T_{1/2}^T$  en el perfil se manifiesta en la zona de alta actividad. Esta zona está fundamentalmente vinculada al

aporte de actividad debido a la sedimentación, con lo cual, la profundidad alcanzada depende de la tasa de sedimentación,  $v$ . Dado que las secciones de las columnas tienen un espesor fijo de 2 cm, cuanto mayor es la velocidad de sedimentación en determinada estación, mayor será también el número de capas asociadas a la zona de alta actividad. Un mayor número de datos de  $^{137}\text{Cs}$  proporciona un perfil mejor definido, de manera que la incertidumbre relativa asociada a los parámetros del ajuste debe ser menor cuanto mayor sea la sedimentación. En concreto, los parámetros  $v$ ,  $T_{1/2}^T$ , asociados fundamentalmente a la zona de sedimentación, serán más precisos cuando se deducen de columnas donde  $v$  es relativamente grande.

Una vez comprobada la existencia de estaciones en las que el ajuste proporciona un tiempo de fuente  $T_{1/2}^T$  próximo a 30.2 años, se consideró innecesaria la inclusión de éste como parámetro de ajuste. En dichas estaciones se ha considerado el valor fijo  $T_{1/2}^T = 30.2$  años. En la tabla 2 se recoge el resultado final, de manera que los tiempos  $T_{1/2}^T$  que sí han sido ajustados aparecen resaltados.

El valor de  $\chi^2$  se sitúa en el intervalo 0.2 – 2.2, y en la mayoría de los casos está muy próximo a la unidad. Esto es una prueba de la bondad de ajuste de este modelo, que con sólo 3 o 4 parámetros libres, es capaz de reproducir todos los perfiles.

### *Sedimentación en la Bahía Interior*

#### ***Tasas de sedimentación***

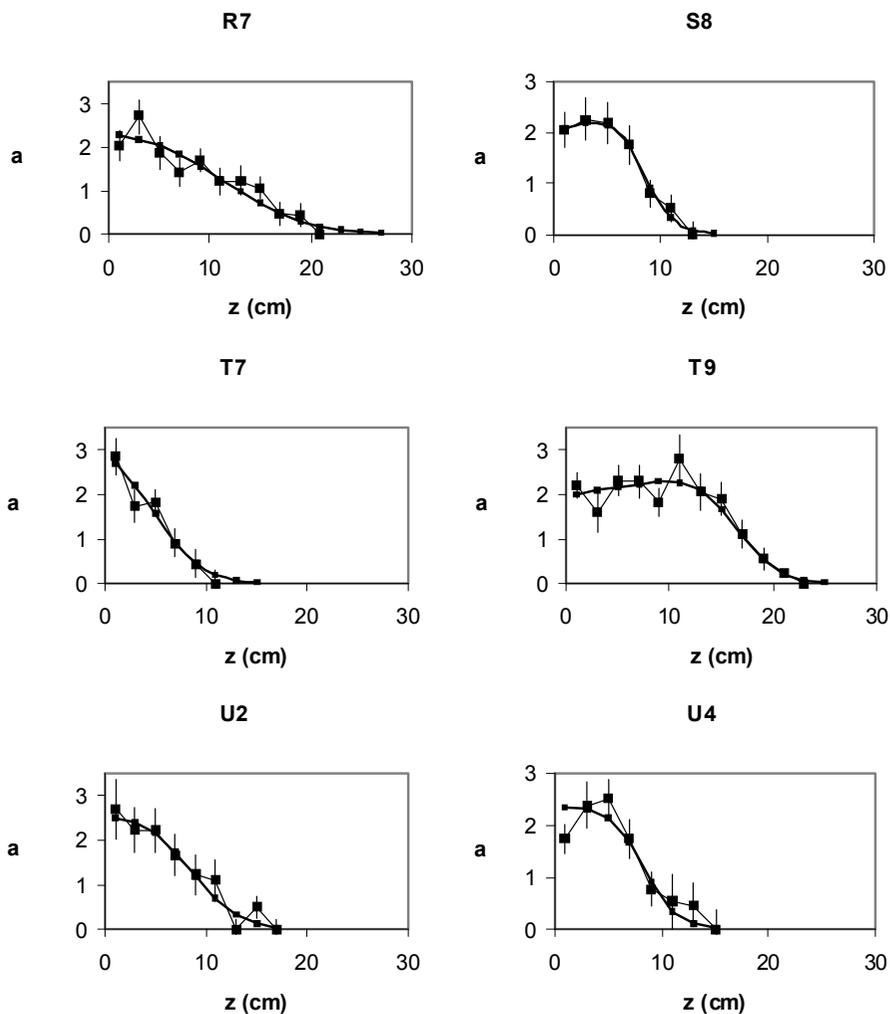
Según se desprende del presente estudio, la Bahía Interior de Cádiz es un entorno en el que tiene lugar una acumulación continua de sedimento. La velocidad de sedimentación  $v$  está comprendida en el intervalo 0.15 – 1.58 (cm/año), con un valor medio de 0.47 cm/año.

En la figura 9 se ha representado el mapa de distribución de  $v$  en la Bahía Interior de Cádiz.

A partir de la velocidad de sedimentación  $v$ , es posible determinar la *tasa o velocidad de sedimentación másica*  $v_m$ , definida como la masa de sedimento que se acumula por unidad de superficie y tiempo. Si denominamos  $\Delta m$  a la cantidad de materia depositada durante un tiempo  $t$  sobre una superficie  $S$ , entonces  $v_m = \Delta m / (St)$ . Dicho sedimento estará contenido en un volumen  $V$ , de espesor

$Z = vt$ , de manera que si la densidad es  $\rho$ , entonces  $\Delta m = \rho S vt$ . Por tanto, la tasa de sedimentación másica es

$$v_m = \rho v \quad (12)$$



**Figura 8. Ajuste de los perfiles de actividad de  $^{137}\text{Cs}$  de la Bahía Interior mediante el modelo propuesto. Estaciones R7, S8, T7, T9, U2, U4.**

La determinación de  $v_m$  requiere el conocimiento de la densidad de sedimento  $\rho$  en todo el volumen  $V$ . Ésta no es la densidad de sedimento en cada capa, sino la densidad media asociada a todo el espesor  $Z = vt$ . Es posible calcular esta densidad, ya que se conoce la cantidad de sedimento de cada capa, y por tanto la cantidad en un espesor cualquiera. En la tabla 3 se exponen los valores del espesor  $Z$  acumulado durante  $t = 35$  años, la densidad media  $\rho$  asociada a dicho espesor, así como la tasa de sedimentación másica  $v_m$  obtenida para cada estación.

**Tabla 3. Espesor  $Z$  de sedimento acumulado durante  $t=35$  años, densidad de sedimento  $\rho$  en dicho espesor y tasa de sedimentación másica  $v_m$ , en algunas estaciones**

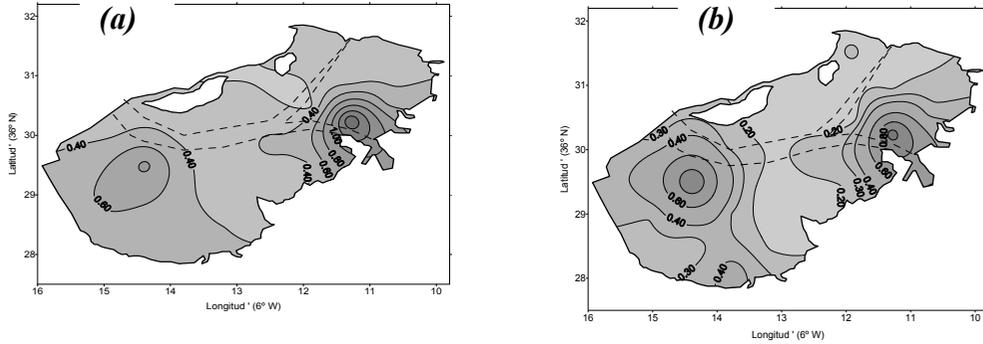
<i>Estación</i>	<i>Z (cm)</i>	<i><math>\rho(\text{g/cm}^3)</math></i>	<i><math>v_m(\text{g/cm}^2 \text{año})</math></i>
<b>P1</b>	20,1	0,66	0,38
<b>R7</b>	11,4	0,66	0,21
<b>S8</b>	8,1	0,67	0,16
<b>T7</b>	5,3	0,81	0,12
<b>T9</b>	17,2	0,70	0,35
<b>U2</b>	9,3	1,06	0,28
<b>U4</b>	9,8	0,90	0,25
<b>U6</b>	16,1	0,58	0,27
<b>U8</b>	55,3	0,69	1,09
<b>V1</b>	15,8	0,84	0,38
<b>V3</b>	29,7	1,17	1,00
<b>V5</b>	8,5	0,53	0,13
<b>V7</b>	13,3	0,58	0,22
<b>W2</b>	22,1	0,48	0,31
<b>W4</b>	15,7	0,65	0,29
<b>W6</b>	7,9	0,51	0,11
<b>X3</b>	17,7	0,47	0,24
<b>X5</b>	13,7	0,45	0,18
<b>Y4</b>	17,7	0,93	0,47
<b>Media</b>	16,4	0,71	0,34
<b><math>\sigma</math></b>	11,4	0,21	0,27

La tasa de sedimentación en la Bahía Interior tiene un valor comprendido en el intervalo  $0.11-1.09 \text{ g cm}^{-2} \text{ año}^{-1}$ , con un valor medio de  $0.34 \text{ g cm}^{-2} \text{ año}^{-1}$ . La distribución geográfica de  $v_m$ , figura 9, es similar al mapa de  $v$ .

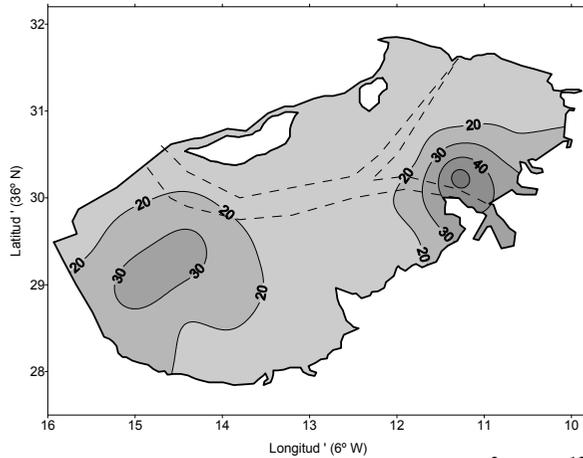
Las diferencias entre la distribución espacial de  $v$  y  $v_m$  son debidas al distinto grado de compactación del sedimento en cada zona.

La distribución espacial de la sedimentación en la Bahía Interior concuerda con la distribución del inventario de  $^{137}\text{Cs}$  (Barrera, 2002), como se aprecia en la figura 10, lo que se refleja en la correlación entre inventario y sedimentación,  $r = 0.96$ . La acumulación global del radioelemento  $^{137}\text{Cs}$  se produce como consecuencia de la sedimentación del material que previamente ha incorporado dicho radioelemento. La máxima profundidad de penetración del  $^{137}\text{Cs}$  en las columnas

sedimentarias de la Bahía,  $Z_M$ , está condicionada fundamentalmente por la sedimentación, como lo demuestra la correlación,  $r = 0.90$  (Barrera, 2002). Esta correlación es menor que la existente entre  $I$  y  $v$ , dado que la presencia de  $^{137}\text{Cs}$  en capas profundas del sedimento está también vinculada a la difusión del radioelemento.



**Figura 9.** Distribución espacial de la tasa de sedimentación en la Bahía Interior determinada mediante el modelo de migración vertical de  $^{137}\text{Cs}$  en las columnas sedimentarias. La figura (a) representa la sedimentación lineal  $v$  ( $\text{cm año}^{-1}$ ). La figura (b) representa la sedimentación másica  $v_m$  ( $\text{g cm}^{-2} \text{año}^{-1}$ ).



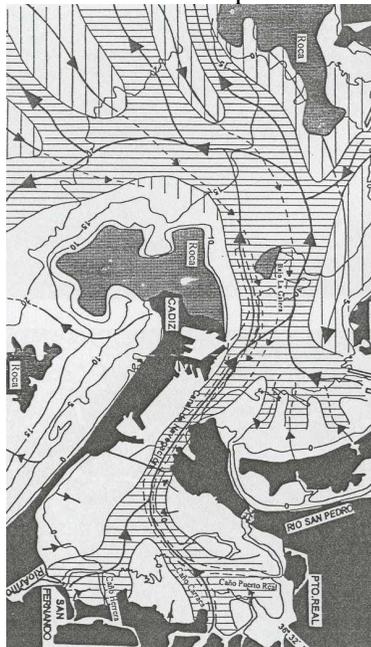
**Figura 10.** Distribución espacial del inventario,  $I$  ( $\text{Bq/m}^2$ ), de  $^{137}\text{Cs}$  en las columnas sedimentarias de la Bahía Interior.

### ***Fuentes de aporte y trayectorias del sedimento***

La distribución espacial de la velocidad de sedimentación indica cuales son las posibles fuentes de aporte de material sedimentario. La sedimentación en la zona este de la Bahía está provocada por un aporte de materia procedente de la zona de marisma que, por tanto, está sufriendo un proceso neto de erosión. En el reflujó mareal, el sedimento es transportado por la red de canales de la marisma, siendo expulsado en suspensión por el caño de Sancti Petri, y posteriormente depositado en las proximidades de la salida de éste. Las fuertes corrientes de marea en el canal de navegación transportan el sedimento en dirección oeste, lo que produce, como puede apreciarse en la figura 9, una lengua de sedimentación que se extiende en esta dirección.

Como puede apreciarse en la figura 9, existen dos trayectorias sedimentarias, deducidas en nuestro trabajo, que transportan el sedimento procedente de las marismas. Ambas trayectorias se unen al sur del Puente Carranza, y continúan hacia la Bahía Exterior por el Estrecho de Puntales. Posteriormente, el sedimento se deposita en la Bahía Exterior, así como la plataforma continental.

En un estudio previo de la zona (Gutiérrez-Mas et al., 1999; Achab, 2000) se han determinado las trayectorias seguidas la arcilla, figura 11. Puede observarse que coinciden notablemente con las determinadas a partir del modelo propuesto.



**Figura 11. Trayectorias seguidas por la arcilla en la Bahía de Cádiz, deducidas a partir de asociaciones mineralógicas (Tomado de Achab, 2000).**

En ese mismo trabajo se propone que el propio fondo de la Bahía Interior actúa también como fuente sedimentaria. En este estudio, el balance neto de materia depositada sobre el fondo de la Bahía es positivo. Ambos trabajos son complementarios, revelando que parte del sedimento procedente de la marisma y depositado en la interfase permanece posteriormente en el fondo de la Bahía Interior, mientras que una fracción escapa, debido probablemente a una selección de tamaños de grano, o a que está compuesta por minerales más ligeros.

En principio, la distribución de la velocidad de sedimentación que hemos encontrado en el presente trabajo no permite descartar la posibilidad de que un aporte sedimentario procedente de la Bahía Exterior acceda a la Bahía Interior a través del Estrecho de Puntales. El Río Guadalete es la principal fuente de sedimentos en la Bahía Exterior, que proporciona cantidades de materia considerables, especialmente en las crecidas (Gutiérrez-Mas et al., 1999). Otras fuentes que aportan sedimento a la Bahía Exterior son el Río San Pedro, el Río Salado, así como otros caños, a lo que se suma las fuentes exteriores a la Bahía, como el Río Guadalquivir. El aporte neto de materia desde la Bahía Exterior hacia la Bahía Interior quedaría excluido atendiendo a estudios complementarios sobre la zona, como el mencionado trabajo (Achab, 2000).

### ***Sedimentación total y materia en suspensión***

Dado que la tasa de sedimentación másica  $v_m$  se ha determinado a partir de un conjunto de estaciones homogéneamente distribuidas, es posible calcular la cantidad total de sedimento que se deposita en la Bahía Interior. La superficie de la Bahía Interior de Cádiz, considerando las zonas permanentemente sumergidas así como la llanura intermareal, sumergida en pleamar, pero sin considerar la superficie del canal de navegación, es de  $31.3 \text{ km}^2$  (Muñoz-Pérez, 1994). Teniendo en cuenta la sedimentación másica media,  $v_m = 0.34 \text{ g cm}^{-2} \text{ año}^{-1}$ , la sedimentación total en la Bahía Interior es de 105.000 toneladas por año.

Por otra parte, dado que la sedimentación neta está vinculada a las mareas, y el número de ciclos mareales de tipo semidiurno al año es de 730 ( $=365 \cdot 2$ ), la sedimentación media por ciclo es de 144 toneladas. La cantidad de materia depositada en cada ciclo dependerá del coeficiente concreto de la marea, por tanto las mareas vivas producirán una sedimentación mayor.

A partir de la sedimentación másica, es posible estimar el valor mínimo de la materia en suspensión  $\rho_{min}$  en la lámina de agua de la Bahía Interior. Para ello, puede utilizarse la expresión que proporciona el flujo de materia  $v_m$ , (ecuación 12), siendo en este caso  $\rho$  la mencionada densidad de materia en suspensión y  $v$  la velocidad de caída de las partículas sobre el fondo. Teniendo en cuenta de nuevo el período de 12 horas vinculado al proceso neto de sedimentación, y considerando que la profundidad media de la Bahía es de 2 metros (Muñoz-Pérez, 1994), podemos aproximar la velocidad de caída de las partículas como  $v \sim 4 \text{ m/día}$ . Ello permite obtener una estimación de la materia en suspensión  $\rho_{min}$  en cada estación, cuyo valor queda expuesto en la tabla 4.

**Tabla 4. Estimación de la concentración mínima de materia en suspensión,  $\rho_{\min}$ , en distintas estaciones, determinada a partir de la tasa de sedimentación másica  $v_m$**

<i>Estación</i>	<i><math>\rho_{\min}(\text{mg/l})</math></i>
<b>P1</b>	2,6
<b>R7</b>	1,5
<b>S8</b>	1,1
<b>T7</b>	0,8
<b>T9</b>	2,4
<b>U2</b>	1,9
<b>U4</b>	1,7
<b>U6</b>	1,8
<b>U8</b>	7,5
<b>V1</b>	2,6
<b>V3</b>	6,8
<b>V5</b>	0,9
<b>V7</b>	1,5
<b>W2</b>	2,1
<b>W4</b>	2,0
<b>W6</b>	0,8
<b>X3</b>	1,6
<b>X5</b>	1,2
<b>Y4</b>	3,2
<b>Rango</b>	0,8 – 7,5
<b>Media</b>	2,3
<b><math>\sigma</math></b>	1,9

La materia en suspensión determinada de esta forma, con valores en el intervalo 0,7-7,5 mg/l, debe considerarse una estimación del límite inferior de la materia en suspensión real que existe en la lámina de agua, a fin de que se pueda producir la sedimentación, promediada a un ciclo de aporte de sedimento. El promedio de  $\rho_{\min}$ , 2,3 mg/l, es el valor mínimo de la materia en suspensión, asociado a la sedimentación en toda la Bahía Interior y en cualquier instante.

En general, la materia en suspensión real debe ser mayor, dado que este último valor no incluye el fenómeno de la resuspensión del sedimento, que tiende a aumentar los valores de la materia en suspensión. La resuspensión del sedimento en la Bahía Interior se produce como consecuencia de la removilización del fondo que provoca el oleaje generado por los vientos, cuyo efecto se acentúa en zonas de menor profundidad, en bajamar y en las regiones donde el efecto del viento es mayor.

#### ***Coefficiente de difusión del $^{137}\text{Cs}$ en los sedimentos***

Según se desprende del modelo propuesto los valores del coeficiente de difusión  $D$  del  $^{137}\text{Cs}$  para los sedimentos estudiados está comprendido en el intervalo

0,05-0,73  $cm^2/año$ , con un valor medio de 0,24  $cm^2/año$ . Este rango de valores es compatible con el determinado por otros autores para sedimentos costeros (Clifton et al., 1994).

Uno de los mecanismos responsables de la migración del  $^{137}Cs$  es la difusión molecular, que se produce como consecuencia del intercambio del radioelemento entre las fases sólida y líquida del medio sedimentario. La afinidad del radioelemento por la fase sólida, representada por el coeficiente de distribución  $k_D$ , y la difusión molecular,  $D^{molec}$ , están inversamente relacionadas. En efecto, cuanto mayor es la afinidad del radioelemento por la fase sólida ( $k_D$ ), menor es la actividad presente en el agua intersticial, y por tanto menor es la difusión molecular del radioelemento. Teniendo en cuenta el recorrido libre del radioisótopo en el agua intersticial, algunos autores (Berner, 1980; Kirchner et al., 1993) aproximan el coeficiente de difusión molecular mediante la expresión

$$D^{molec} \approx \frac{\phi^2 D_o^{molec}}{1 + \frac{\rho}{\phi} k_D} \quad (13)$$

siendo  $\Phi$  la porosidad del sedimento (cociente entre el contenido de agua intersticial y la masa de sedimento húmedo),  $\rho$  la densidad del sedimento en el volumen húmedo, y  $D_o^{molec}$  el coeficiente de difusión molecular del  $^{137}Cs$  en agua, cuyo valor es  $10^{-5} cm^2/s$  aproximadamente (Li y Gregory, 1974).

Aceptando como hipótesis de trabajo la expresión (13), se ha estimado la constante de distribución  $k_D$  en las columnas sedimentarias bajo estudio. Su valor está comprendido en el intervalo 75-1915  $cm^3/g$ , para las distintas estaciones, como se muestra en la tabla 5, con un valor medio de 551  $cm^3/g$ . La constante de distribución  $k_D$  presenta una gran correlación con la actividad de  $^{137}Cs$  en la interfase ( $r = 0.75$ ) así como con el contenido de carbono orgánico ( $r = 0.70$ ). Ello demuestra que la capacidad de retención de  $^{137}Cs$  en los sedimentos superficiales está vinculada a la materia orgánica, y por tanto, a la granulometría del sedimento.

La constante de distribución no presenta correlación con los inventarios totales de  $^{137}Cs$ , lo que demuestra que el contenido total de  $^{137}Cs$  en cada estación no está asociado a la capacidad de absorción del radioelemento. Ello corrobora el modelo propuesto para la migración vertical del  $^{137}Cs$ , que atribuye el valor de los inventarios a la velocidad de sedimentación, en lugar de atribuirlo a dicha capacidad de absorción.

La constante de distribución,  $k_D$ , en medios sedimentarios de composición mineralógica arcillosa, determinada en diferentes estudios de campo y de laboratorio (Young-Hwan et al., 1996), tiene un valor comprendido entre  $10^3$  y  $10^4 cm^3/g$ . En este caso, el valor de  $k_D$  se sitúa en el límite inferior y por debajo de dicho intervalo,

lo que indica que el parámetro  $D^{molec}$ , que hemos empleado para determinar  $k_D$ , ha sido sobreestimado. Ello demuestra que la difusión del  $^{137}\text{Cs}$  no es sólo de carácter molecular. La mezcla biológica del material sedimentario producida por los organismos bentónicos parece ser, por tanto, responsable de parte del flujo difusivo de actividad de  $^{137}\text{Cs}$ .

**Tabla 5. Coeficiente de distribución  $k_D$  del  $^{137}\text{Cs}$  en los sedimentos, determinado bajo la hipótesis de que la difusión del radioelemento es exclusivamente molecular**

<i>Estación</i>	<i><math>k_D</math> (<math>\text{cm}^3/\text{g}</math>)</i>
<b>P1</b>	120
<b>R7</b>	88
<b>S8</b>	560
<b>T7</b>	170
<b>T9</b>	307
<b>U2</b>	75
<b>U4</b>	246
<b>U6</b>	439
<b>U8</b>	262
<b>V1</b>	266
<b>V3</b>	94
<b>V5</b>	571
<b>V7</b>	1915
<b>W2</b>	364
<b>W4</b>	538
<b>W6</b>	600
<b>X3</b>	1451
<b>X5</b>	1878
<b>Y4</b>	99
<b>Rango</b>	75-1915
<b>Media</b>	551
<b><math>\sigma</math></b>	520

*Tiempo de aporte  $T_{1/2}^T$  y tiempo de residencia  $T_{1/2}^S$*

El tiempo de aporte de  $^{137}\text{Cs}$  en la interfase,  $T_{1/2}^T$ , determinado mediante el algoritmo propuesto con anterioridad, quedó recogido en la tabla 2. El ajuste de dicho parámetro del modelo ha sido preciso sólo en algunas estaciones (S8, T9, U8, V3 y V7), en las que se obtiene un tiempo de aporte  $T_{1/2}^T < 30,2$  años. En el resto de las estaciones, el ajuste proporciona un tiempo de aporte igual a la semivida del  $^{137}\text{Cs}$ , de manera que en tales estaciones no se consideró  $T_{1/2}^T$  como parámetro ajustable, sino que se les asignó dicho valor.

El tiempo de aporte  $T_{1/2}^T$  se relaciona con la semivida,  $T_{1/2}$ , y con el tiempo de residencia del radioelemento en la zona fuente,  $T_{1/2}^S$ , mediante la expresión (9), lo que permite obtener  $T_{1/2}^S$

$$T_{1/2}^S = \frac{T_{1/2} T_{1/2}^T}{T_{1/2} - T_{1/2}^T} \quad (14)$$

Un tiempo de aporte igual a la semivida,  $T_{1/2}^T = T_{1/2} = 30.2$  años, se produce como consecuencia de un tiempo de residencia infinito, en la práctica, muy grande en relación a  $T_{1/2}$ . Por el contrario, si el tiempo de aporte es menor que la semivida,  $T_{1/2}^T < 30.5$  años, es posible afirmar que el tiempo de residencia es comparable a ésta última. Aplicando la expresión (14) a las estaciones que presentan esta última situación, obtenemos el tiempo de residencia asociado a las mismas, como se muestra en la tabla 6.

**Tabla 6. Tiempo de residencia del  $^{137}\text{Cs}$  en la zona fuente**

<i>Estación</i>	<i><math>T_{1/2}^S</math> (años)</i>
<b>S8</b>	82
<b>T9</b>	77
<b>U8</b>	31
<b>V3</b>	31
<b>V7</b>	61

Todas las estaciones que aparecen en esta tabla, salvo V3, están situadas en la zona este de la Bahía Interior. El tiempo de residencia obtenido está comprendido en el intervalo 31-82 años. La estación U8, localizada cerca de la salida del caño de Sancti Petri, posee el perfil de  $^{137}\text{Cs}$  mejor definido de todos los medidos, y presenta un tiempo de residencia de 31 años.

Por tanto, el fenómeno de un tiempo de residencia limitado está asociado a los sedimentos que proceden del caño de Sancti Petri. Según esta idea, la estación V3 parece recibir sedimento procedente de dicha fuente. Consecuentemente, el  $^{137}\text{Cs}$  presenta un tiempo de residencia limitado, en el intervalo 31-82 años, en la zona de marisma drenada por el mencionado caño.

El resto de las estaciones, localizadas fundamentalmente en la zona oeste de la Bahía, muestran perfiles de actividad que no acusan un tiempo de residencia limitado. Dado que el sedimento en estas estaciones procede de la marisma situada al sur de la Bahía, el tiempo de residencia del  $^{137}\text{Cs}$  en esta zona es mucho mayor que el tiempo de residencia en las marismas drenadas por el caño de Sancti Petri.

Ello puede deberse a una eliminación rápida del  $^{137}\text{Cs}$  en esta última zona, como consecuencia de una mayor erosión en la misma.

Todo ello demuestra que el tiempo de residencia es una útil herramienta para identificar las fuentes sedimentarias en la Bahía de Cádiz.

### **Fecha de sedimentos**

Determinadas las tasas de sedimentación en cada una de las estaciones, que se han expresado mediante  $v$  y  $v_m$ , es posible deducir a partir de ellas la fecha de formación de cada capa sedimentaria

El fechado de los sedimentos es una útil herramienta que puede permitir estudiar la evolución histórica de la contaminación en la Bahía de Cádiz.

#### *Fecha de las capas de sedimento*

El fechado de los sedimentos se efectuará bajo la hipótesis de que la sedimentación ha tenido lugar a velocidad constante. Como veremos a continuación, las hipótesis  $v = cte$  y  $v_m = cte$  conducen a resultados ligeramente distintos, debido a la compactación del sedimento.

Dado que las capas poseen un espesor  $\delta z$ , una velocidad de sedimentación  $v = cte$  asigna una separación temporal igual,  $\Delta t = \delta z / v$ , entre las distintas capas de una misma columna. La capa más superficial,  $N = 1$ , habría empezado a formarse en el instante de tiempo  $t = -\Delta t$ , y habría terminado su formación en  $t = 0$ . En general, la capa  $N$  se habrá sedimentado durante el intervalo de tiempo  $[-\Delta t N, -\Delta t (N - 1)]$ .

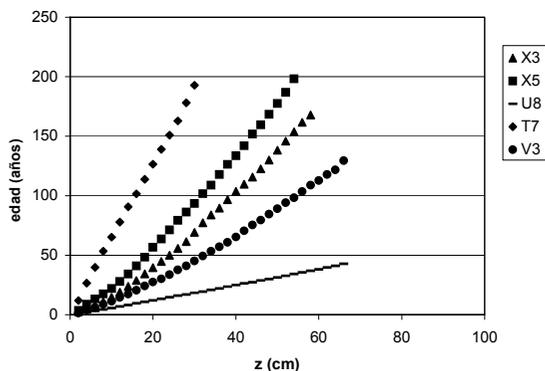
Los sedimentos bajo estudio presentan compactación, es decir, un aumento de la densidad de materia a medida que aumenta la profundidad. Por tanto, si el flujo de materia asociado a la sedimentación es constante,  $v_m = cte$ , el tiempo de formación asociado a las capas más profundas es mayor que el correspondiente a las más superficiales. En este caso, una capa de espesor másico acumulado  $\delta m$  (cantidad de materia por unidad de superficie) se deposita durante un tiempo  $\Delta t = \delta m / v_m$ . Con ello, la capa superficial se forma en el intervalo de tiempo  $[t = -\delta m_1 / v_m, 0]$ . En general, una capa  $N$  se deposita en el intervalo de tiempo  $[t = -\delta m_N / v_m, -\delta m_{N-1} / v_m]$ , siendo  $\delta m_N$  el espesor másico acumulado, desde la base de la capa  $N$  hasta la interfase. Finalmente, teniendo en cuenta la fecha de

muestreo,  $t_o=1998$ , la fecha de formación de la capa se determina mediante  $fecha = t_o + t$ .

Suponiendo que las condiciones globales de transporte y sedimentación en la Bahía Interior se han mantenido básicamente constantes a lo largo de las últimas décadas, es razonable admitir la hipótesis de flujo de materia constante,  $v_m=cte$ .

Siguiendo este método, se han fechado las capas de las columnas de sedimento de la Bahía Interior. En principio, el fechado es posible en las capas que se encuentran a una profundidad en la que se detecta  $^{137}\text{Cs}$ , y que por tanto poseen una edad menor que  $t \sim 35$  años. No obstante, es posible extender el fechado hacia capas más profundas, admitiendo la hipótesis  $v_m=cte$  en las mismas. La exactitud del fechado dependerá, por tanto, de la validez de dicha hipótesis.

En cualquier caso, la citada extrapolación produce una incertidumbre en el fechado, que crece con la profundidad de cada capa. Se han fechado las capas hasta una antigüedad máxima de 200 años, con objeto de mostrar la evolución de la contaminación por metales pesados en la Bahía de Cádiz, de manera que podamos comparar los niveles actuales con los niveles naturales, que aparecen en dichas capas antiguas. Dado el carácter descriptivo que pretende la datación de tales capas antiguas, la posible incertidumbre en las mismas no afecta al estudio del aumento de la contaminación, que tiene lugar en los sedimentos recientes. No obstante, la extrapolación, como se demostrará posteriormente en la validación mediante el fechado por  $^{210}\text{Pb}$ , proporciona resultados sorprendentemente buenos.



**Figura 12.** Edad de las capas de sedimento de algunas estaciones de la Bahía Interior, determinada mediante el fechado por  $^{137}\text{Cs}$  obtenido en el presente trabajo.

Los resultados obtenidos se muestran en la tabla 7, y la figura 12 representa la edad de las capas en función de la profundidad, para algunas estaciones. A cualquier profundidad, la edad de las capas es menor en las columnas con mayor velocidad de sedimentación, lo que implica una menor pendiente en la gráfica de las estaciones con mayor velocidad de sedimentación. Cuando no existe compactación del sedimento, la edad y la profundidad presentan una relación lineal, en caso contrario se produce una separación de la linealidad, de manera que la edad de las capas más profundas crece más rápidamente.

### Validación del modelo

Según se desprende del presente estudio, el comportamiento del  $^{137}\text{Cs}$  en la Bahía de Cádiz puede resumirse en los siguientes puntos:

1. *Origen del  $^{137}\text{Cs}$ .* La procedencia de este radioelemento artificial es la lluvia radiactiva generada tras las pruebas de armamento nuclear, fundamentalmente las realizadas durante los años 1961-1962. La deposición sobre la zona de radiactividad procedente del accidente de Chernobyl es mucho menor que la correspondiente a las pruebas nucleares.
2. *Acumulación y transporte del  $^{137}\text{Cs}$ .* Tras su deposición, el  $^{137}\text{Cs}$  que cae sobre el medio acuático permanece en forma soluble, siendo expulsado hacia el exterior de la Bahía por las corrientes de refluo de marea, mientras que la actividad depositada sobre la marisma se incorpora en los sedimentos de la misma, donde el radioelemento  $^{137}\text{Cs}$  posee tiempos de residencia elevados (~30-80 años). Posteriormente, debido a la erosión de la marisma, el sedimento, y con ello el radioelemento, es transportado por las corrientes de marea y depositado en el fondo de la Bahía.
3. *Comportamiento del  $^{137}\text{Cs}$  en la columna sedimentaria.* Tras su incorporación desde la interfase sedimentaria, la evolución del radioelemento está determinada por el decaimiento radiactivo, la sedimentación y la movilidad posdeposicional. Ésta última se produce como consecuencia de la difusión molecular del radioelemento, así como debido a los fenómenos de bioturbación provocados por la actividad biológica en la columna sedimentaria.

La sedimentación determinada en la Bahía Interior mediante el presente modelo de migración de  $^{137}\text{Cs}$  ha sido contrastada con la información que se desprende de otros estudios complementarios efectuados sobre la zona. Se ha comparado el fechado realizado en este trabajo con otro efectuado usando la técnica del  $^{210}\text{Pb}$  (AMA, 1998; Gutiérrez, 1999). Asimismo, para comprobar la validez de las tasas de sedimentación obtenidas, se han empleado las diferencias en la Batimetría del fondo de la Bahía, determinadas por comparación de cartas náuticas antiguas y modernas (Muñoz-Pérez, 1994). Por último, se ha utilizado un método de validación, derivado de nuestras propias medidas experimentales, consistente en la detección del máximo de actividad de  $^{137}\text{Cs}$ , asociado al evento de Chernobyl.

**Tabla 7. Fecha media de formación de las capas de sedimento, determinada bajo la hipótesis  $v_m = \text{cte}$ , durante los dos últimos siglos. Entre paréntesis se indica la resolución temporal del método, debida al espesor finito de las capas. Se ha resaltado en negrita las capas que presentan el máximo de actividad asociado al evento de Chernobyl.**

<i>z</i> (cm)	P1	R7	S8	T7	T9	U2	U4	U6	U8	V1
0-2	1993(1)	1995(3)	1994(4)	1992(6)	1997(2)	1993(5)	1995(3)	1996(2)	1997(1)	1997(1)
2-4	1990(2)	<b>1990(3)</b>	1986(5)	1979(8)	1994(2)	1985(4)	<b>1989(4)</b>	1993(2)	1996(1)	1994(2)
4-6	<b>1987(2)</b>	1985(3)	1977(5)	1965(7)	1990(2)	1977(5)	<b>1981(4)</b>	1989(2)	1995(1)	1989(3)
6-8	1983(2)	1979(4)	1968(5)	1952(7)	1987(2)	1969(3)	1974(4)	1985(2)	1994(1)	1984(3)
8-10	1980(2)	1972(4)	1960(5)	1939(6)	1983(3)	1962(4)	1966(4)	1980(3)	1993(1)	1978(4)
10-12	1976(2)	1965(4)	1951(5)	1927(7)	1978(3)	1957(3)	1959(4)	1976(2)	1991(1)	1972(3)
12-14	1971(2)	1958(4)	1942(5)	1914(7)	1973(3)	1951(3)	1951(4)	1972(2)	1990(1)	1967(3)
14-16	1968(2)	1951(4)	1933(5)	1902(6)	1968(2)	1945(4)	1944(4)	1967(3)	1989(1)	1963(2)
16-18	1964(2)	1944(3)	1922(6)	1890(6)	1964(3)	1938(3)	1937(3)	1962(3)	1988(1)	1959(2)
18-20	1960(2)	1938(4)	1909(7)	1878(6)	1959(3)	1932(4)	1931(4)	1956(3)	1986(1)	1956(2)
20-22	1955(2)	1931(4)	1895(7)	1866(7)	1954(3)	1925(3)	1924(3)	1950(4)	1985(1)	1953(2)
22-24	1951(2)	1924(4)	1882(8)	1853(6)	1949(3)	1918(4)	1917(4)	1944(3)	1984(1)	1949(2)
24-26	1946(2)	1916(4)	1867(8)	1841(6)	1944(3)	1911(3)	1909(4)	1939(3)	1982(1)	1945(2)
26-28	1942(2)	1909(3)	1852(7)	1828(8)	1939(2)	1904(4)	1900(5)	1933(3)	1981(1)	1942(2)
28-30	1937(2)	1903(4)	1838(7)	1813(8)	1935(3)	1896(4)	1890(5)	1928(3)	1980(1)	1938(2)
30-32	1932(2)	1987(3)	1824(7)		1930(3)	1889(4)	1880(6)	1923(3)	1979(1)	1934(2)
32-34	1928(2)	1890(4)	1810(7)		1925(3)	1881(4)	1869(5)	1917(3)	1978(1)	1930(2)
34-36	1923(2)	1883(3)			1920(3)	1873(5)	1859(5)	1912(2)	1976(1)	1926(2)
36-38	1959(3)	1877(4)			1915(3)	1865(4)	1850(4)	1907(3)	1975(1)	1923(2)
38-40		1869(4)			1910(3)	1857(4)	1841(6)	1902(2)	1973(1)	1919(2)
40-42		1862(3)			1905(2)	1849(5)	1831(5)	1897(3)	1972(1)	1915(2)
42-44		1856(4)			1901(2)	1840(4)	1822(5)	1891(3)	1971(1)	1911(2)
44-46		1848(4)			1897(3)	1832(5)	1813(5)	1885(3)	1970(1)	1907(2)

<i>z</i> (cm)	V3	V5	V7	W2	W4	W6	X3	X5	Y4
0-2	1997(1)	1995(3)	1995(3)	1996(2)	1996(2)	1994(4)	1996(2)	1995(3)	1996(2)
2-4	1995(2)	<b>1988(4)</b>	1991(2)	1993(2)	1992(2)	1986(4)	1993(1)	1990(3)	1993(2)
4-6	1993(1)	1981(4)	1986(3)	1990(2)	1989(2)	1978(5)	<b>1990(2)</b>	<b>1986(2)</b>	1990(2)
6-8	1990(2)	1974(4)	1981(3)	1987(2)	1984(3)	1968(6)	<b>1987(2)</b>	1982(2)	<b>1986(2)</b>
8-10	<b>1988(1)</b>	1964(6)	1976(3)	1984(2)	1979(3)	1958(4)	1984(2)	1977(3)	1982(2)
10-12	1985(2)	1953(5)	1970(4)	1980(2)	1974(3)	1949(5)	1980(2)	1972(3)	1978(2)
12-14	1982(2)	1943(5)	1964(3)	1976(2)	1969(3)	1940(5)	1975(3)	1966(3)	1974(2)
14-16	1979(2)	1933(5)	1958(3)	1971(3)	1964(3)	1928(7)	1970(3)	1959(4)	1969(3)
16-18	1975(2)	1923(5)	1953(3)	1966(3)	1958(3)	1915(7)	1965(3)	1952(4)	1965(2)
18-20	1972(2)	1912(6)	1947(3)	1962(2)	1953(3)	1901(7)	1960(3)	1944(5)	1960(3)
20-22	1969(2)	1900(6)	1942(3)	1957(3)	1948(3)	1888(7)	1954(3)	1936(4)	1956(2)
22-24	1966(2)	1890(5)	1936(3)	1952(3)	1942(3)	1874(7)	1949(3)	1929(4)	1952(2)
24-26	1962(2)	1879(6)	1930(3)	1948(2)	1937(3)	1861(7)	1944(3)	1922(4)	1947(3)
26-28	1958(2)	1868(6)	1925(3)	1943(3)	1932(3)	1849(6)	1938(3)	1914(4)	1943(2)
28-30	1955(2)	1856(6)	1920(3)	1939(2)	1927(3)	1836(7)	1932(4)	1907(4)	1938(3)
30-32	1951(2)	1845(6)	1916(2)	1934(3)	1921(3)	1823(7)	1924(4)	1899(4)	1933(3)
32-34	1947(2)	1834(6)	1911(3)	1929(3)	1914(4)	1810(7)	1916(4)	1891(4)	1928(3)
34-36	1943(2)	1821(7)	1906(2)	1924(3)	1907(4)		1910(3)	1883(5)	1923(3)
36-38	1939(2)	1808(7)	1901(3)	1918(3)	1899(4)		1903(4)	1875(4)	1919(2)
38-40	1935(2)		1907(2)	1912(3)	1890(5)		1896(4)	1867(4)	1915(2)
40-42	1930(3)		1892(3)	1905(4)	1882(4)		1890(3)	1859(4)	1911(2)
42-44	1924(3)		1887(3)	1899(3)	1874(5)		1884(3)	1850(5)	1907(2)
44-46	1920(2)		1882(3)	1893(3)	1866(4)		1877(4)	1841(4)	1902(3)

La concordancia de las tasas de sedimentación determinadas en el presente trabajo con los resultados obtenidos mediante tales técnicas independientes apoyan la validez del modelo propuesto para el comportamiento del  $^{137}\text{Cs}$  en la Bahía de Cádiz, y su utilidad en el estudio de los procesos sedimentarios en la zona.

#### *Fechaado mediante $^{210}\text{Pb}$*

Se ha comparado la datación obtenida mediante  $^{137}\text{Cs}$ , con el fechaado realizado en un estudio previo (Gutiérrez, 1999) utilizando la técnica de  $^{210}\text{Pb}$ . Las medidas de  $^{210}\text{Pb}$  se efectuaron en las cinco estaciones de la Bahía Exterior, en la estación del Estrecho de Puntales (P1) y en tres estaciones de la Bahía Interior (T6, V5, X3). Sin embargo, tal y como ocurre con el fechaado por  $^{137}\text{Cs}$ , el fechaado mediante  $^{210}\text{Pb}$  sólo es posible en las estaciones que presentan una dinámica relativamente poco energética, de manera que el tamaño de grano del sedimento sea lo suficientemente pequeño para fijar una actividad apreciable del radioelemento  $^{210}\text{Pb}$ . Por tanto, sólo ha sido posible aplicar conjuntamente el fechaado por  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{137}\text{Cs}$  en las estaciones P1 (Estrecho de Puntales), V5 y X3 (Bahía Interior).

La técnica de fechaado mediante  $^{210}\text{Pb}$  requiere la correcta interpretación del perfil de este radioelemento con la profundidad. El modelo empleado en el presente fechaado ha sido el CRS (*Constant Rate of Supply*) (Appleby y Oldfield, 1978), en el que se supone que el flujo de actividad de  $^{210}\text{Pb}$  sobre la interfase sedimentaria es constante. El modelo CRS permite determinar variaciones de la tasa de sedimentación  $v_m$  en el tiempo, atribuyendo cualquier déficit de actividad en el perfil de  $^{210}\text{Pb}$  a un incremento en  $v_m$ .

En la figura 13 se han representado los perfiles de  $^{210}\text{Pb}$  en las estaciones estudiadas, apreciándose la forma característica decreciente de la actividad, que a la profundidad de 30-40 cm se reduce al valor de 10 Bq/kg en todos los casos. Dicha actividad de fondo corresponde al equilibrio secular del  $^{210}\text{Pb}$  con su progenitor, el  $^{226}\text{Ra}$ . La zona superficial del sedimento,  $z < 30\text{-}40$  cm, es susceptible de ser fechaada, dado que presenta actividad de  $^{210}\text{Pb}$  procedente del flujo atmosférico ( $^{210}\text{Pb}$  en exceso).

En todas las estaciones, la actividad de  $^{210}\text{Pb}$  en la interfase es inferior al valor en las capas subyacentes. Este efecto es especialmente patente en la estación X3, donde la actividad en la capa superficial es sólo ligeramente superior a la actividad de equilibrio secular. En las estaciones P1 y V5, el efecto de interfase es mucho más limitado. En cualquier caso, el efecto de interfase se extiende en todas las estaciones en el intervalo de profundidad  $z = 0\text{-}6$  cm.

En la tabla 9, se muestra la edad de las capas de sedimento, determinada mediante  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{210}\text{Pb}$ . Ambos métodos proporcionan un fechaado idéntico para la estación V5, con lo cual, puede afirmarse que las tasas de sedimentación ( $v = 0.24$  cm/año,  $v_m = 0.13$  g/cm<sup>2</sup>) determinadas para esta estación son correctas. La

concordancia del fechado en V5 implica una validación mutua de ambas técnicas, de manera que no sólo es válido el modelo que describe el comportamiento del  $^{137}\text{Cs}$ , sino que la hipótesis de extrapolación de tasas de sedimentación hacia capas profundas también resulta válida. Asimismo, se demuestra que el modelo de fechado CRS describe adecuadamente el comportamiento del  $^{210}\text{Pb}$  en esta estación.

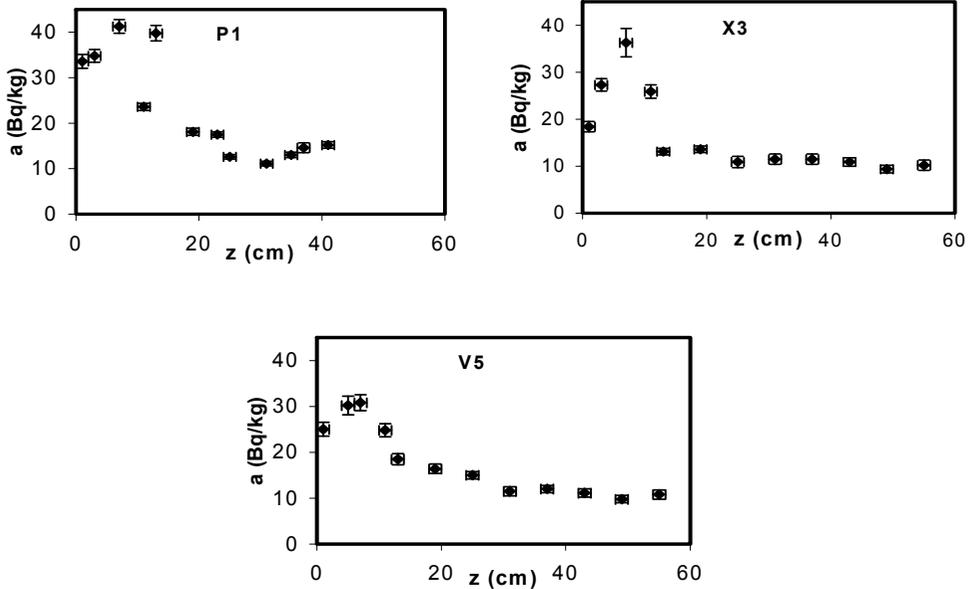


Figura 13. Perfiles de actividad de  $^{210}\text{Pb}$  en las estaciones P1, V5 y X3.

Tabla 8. Edad, en años, de las capas de sedimento de las estaciones V5, X3, P1, determinada mediante el fechado por  $^{137}\text{Cs}$  y por  $^{210}\text{Pb}$ .

Z (cm)	V5		X3		P1	
	$^{137}\text{Cs}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{210}\text{Pb}$
0-2	2 ± 2	2 ± 1	1 ± 1	2 ± 1	4 ± 2	2 ± 1
2-4	8 ± 3	6 ± 1	4 ± 1	6 ± 1	7 ± 2	6 ± 1
4-6	16 ± 4	12 ± 1	6 ± 1	13 ± 1	10 ± 2	11 ± 1
6-8	23 ± 4	19 ± 2	9 ± 2	25 ± 1	14 ± 2	19 ± 1
8-10	33 ± 6	28 ± 3	13 ± 2	41 ± 2	17 ± 2	24 ± 1
10-12	44 ± 5	38 ± 4	17 ± 2	65 ± 4	21 ± 2	28 ± 1
12-14	54 ± 5	45 ± 5	21 ± 2	73 ± 4	26 ± 2	42 ± 2
14-16	64 ± 5	52 ± 7	26 ± 3	85 ± 5	29 ± 2	59 ± 2
16-18	74 ± 5	61 ± 10	32 ± 3	107 ± 8	33 ± 2	78 ± 3
18-20	85 ± 6	72 ± 14				
20-22	96 ± 5	87 ± 23				
22-24	107 ± 5	111 ± 51				

Ambas técnicas también proporcionan un fechado similar en el espesor  $z = 0-12 \text{ cm}$  de la estación P1. A mayor profundidad, sin embargo, el fechado por  $^{210}\text{Pb}$  proporciona una edad mucho mayor que el método de  $^{137}\text{Cs}$ . La separación temporal entre las distintas capas del intervalo  $z = 0-12 \text{ cm}$ , asignada por ambas técnicas, es de 4 años aproximadamente, lo que implica una tasa de sedimentación constante en torno a  $0.5 \text{ cm/año}$ . A la profundidad  $z > 12 \text{ cm}$ , el fechado por  $^{137}\text{Cs}$  mantiene una separación temporal constante de 4 años entre las distintas capas de esta estación, lo que obedece a la hipótesis de partida del presente modelo de tasa de sedimentación  $v_m$  constante. Sin embargo, el fechado por  $^{210}\text{Pb}$  asigna a la profundidad  $z > 12 \text{ cm}$  una separación temporal entre capas drásticamente mayor, entre a 14 y 19 años.

El fechado por  $^{210}\text{Pb}$  indica, por tanto, que la sedimentación en la estación P1 ha sufrido un aumento brusco hace unos 30 años aproximadamente, cuadruplicándose con respecto a su valor anterior. Dicho aumento está vinculado a la discontinuidad que puede apreciarse en el perfil de  $^{210}\text{Pb}$ , entre las capas  $10-12 \text{ cm}$  y  $12-14 \text{ cm}$ . El modelo CRS proporciona la edad de las capas en términos del inventario acumulado de  $^{210}\text{Pb}$ , lo que implica que las variaciones bruscas en la actividad del radioelemento afectan seriamente al fechado obtenido.

Por último, la datación de las capas de la estación X3 no es coincidente para  $z > 4 \text{ cm}$ , pues el método del  $^{210}\text{Pb}$  asigna una edad dos o tres veces superior que el del  $^{137}\text{Cs}$ . Aunque en principio no es posible afirmar cuál aporta la sedimentación correcta, existen argumentos que ponen en duda la exactitud del fechado por  $^{210}\text{Pb}$  en esta estación y apoyan nuestro fechado por  $^{137}\text{Cs}$ .

En primer lugar, teniendo en cuenta el acusado efecto de interfase que presenta el perfil de  $^{210}\text{Pb}$  en esta estación, el modelo CRS debería ser considerado con precaución. La tasa de sedimentación que proporciona este modelo varía entre  $0.04 \text{ g cm}^{-2} \text{ año}^{-1}$  en las capas más profundas hasta un valor de  $0.38 \text{ g cm}^{-2} \text{ año}^{-1}$  en las capas más superficiales, es decir un orden de magnitud de diferencia, y no hay evidencia de que ningún fenómeno natural o antrópico haya alterado tan drásticamente las condiciones sedimentarias en el entorno de la estación X3. Por tanto, los resultados obtenidos mediante el fechado por  $^{210}\text{Pb}$  parecen indicar que el modelo CRS no reproduce adecuadamente el comportamiento de dicho radioelemento en la citada estación. El fechado por  $^{210}\text{Pb}$  debería ser efectuado mediante un modelo que incluyese la mezcla biológica o difusiva de este radioelemento, similar al considerado en el presente trabajo para describir los perfiles de  $^{137}\text{Cs}$ .

La tasa de sedimentación deducida mediante el fechado por  $^{210}\text{Pb}$  en la estación X3 es  $v = 0.16 \text{ cm/año}$ , mientras que la deducida por el fechado por  $^{137}\text{Cs}$ ,  $v = 0.51 \text{ cm/año}$ , coincide con el valor determinado mediante el método batimétrico con el que se obtienen valores comprendidos entre  $0.3 \text{ cm/año}$  y  $0.8 \text{ cm/año}$ , arrojando un valor medio de  $0.52 \text{ cm/año}$  (Muñoz-Pérez, 1994), que coincide notablemente con el rango de valores determinado mediante el fechado por  $^{137}\text{Cs}$ , lo

que constituye otro argumento a favor de la validez del fechado por  $^{137}\text{Cs}$  en la citada estación.

## Bibliografía

- Achab M. (2000) *Estudio de la transferencia sedimentaria entre la Bahía de Cádiz y la plataforma continental adyacente. Modelo de transporte mediante el uso de minerales de la arcilla como trazadores naturales*. Tesis doctoral. Universidad de Cádiz.
- AMA (1998) *Datación de sedimentos en la Bahía de Cádiz. Estudio histórico del Impacto Industrial*. Informe Universidad de Cádiz-Consejería de Medio Ambiente de la Junta de Andalucía.
- Appleby P. G. y Oldfield F. (1978) The calculation of  $^{210}\text{Pb}$  dates assuming a constant rate of supply of unsupported  $^{210}\text{Pb}$  to the sediment. *Catena* 5, 1-8.
- Barrera, M. (2002) *Aplicaciones de técnicas de espectrometría nuclear a columnas de sedimentos en la Bahía de Cádiz*. Tesis Doctoral. Universidad de Cádiz.
- Berner R. A. (1980) *Early Diagenesis. A Theoretical Approach*. Princeton Univ. Press. Princeton.
- Chamard P. Velasco R. H., Belli M., Di Silvestro G., Ingrao G. y Sansone U. (1993) Caesium-137 and strontium-90 distribution in a soil profile. *Science of the total Environment*, 136, 251-258.
- Clifton R. J., Watson P. G., Davey J. T., Frickers P. E. (1994) A study of processes affecting the uptake of contaminants by intertidal sediments, using the radioactive tracers:  $^7\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and unsupported  $^{210}\text{Pb}$ . *Estuarine, Coastal and Shelf science* 41, 459-474.
- Gutiérrez E. (1999) *Aplicación del método de fechado por  $^{210}\text{Pb}$  en sistemas acuáticos de Andalucía occidental*. Tesis de licenciatura. Universidad de Sevilla.
- Gutiérrez-Mas J. M., Sánchez-Bellón A., Achab M., Ruiz J., Gonzalez J. L., Parrado J. M. and López Aguayo F. (1999) Continental shelf zones influenced by the suspended matter flows coming from Cádiz Bay. *Bol. Inst. Esp. Oceanogr.* 15(1-4), 145-152.
- Haberman R. (1987) *Elementary applied partial differential equations*. Ed. Prentice Hall. New Jersey.
- Kirchner G., Baumgartner D., Delitzsch, Schabl G., y Wellner R. (1993) Laboratory studies on the sorption behaviour of fallout radionuclides in agricultural used soils. *Model. Geo-Biosphere Process.* 2, 115-127.
- Kirchner G. (1998) Applicability of compartmental models for simulating the transport of radionuclides in soil. *J. Environ. Radioactivity* 38(3), 339-352.
- Krasnov M., Kiseliiov A., Makarenko G. y Shikin E. (1990) *Curso de matemáticas superiores para ingenieros*. MIR. Moscú.
- Li Y. H. y Gregory S. (1974) Diffusion of ions in sea water and deep sea sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta* 38, 703-714.

- Muñoz-Perez J. L. y Sánchez A. (1994) *El medio físico y biológico en la Bahía de Cádiz: Saco Interior*. Informaciones Técnicas 28/94. Consejería de Agricultura y Pesca, Junta de Andalucía.
- Robbins J. A., Krezoski J. R. y Mozley S. C. (1977) Radioactivity in sediments of the Great Lakes: postdepositional redistribution by deposit-feeding organisms. *Earth Planet. Sci. Lett.* 36, 325-333.

Referencia de este artículo:

- Casas-Ruiz M., Barrera, M., Fera, F., Corredor, C. y Ligeró L. A. (2004): Un Modelo de Migración Vertical del  $^{137}\text{Cs}$ . En: L. Barbero y M.P. Mata (Eds.). *Geoquímica Isotópica Aplicada al Medioambiente, Seminarios de la Sociedad Española de Mineralogía* (ISSN: 1698-5478), 1, 107-147.