



UNIVERSITAT
POLITÈCNICA
DE VALÈNCIA

Estudio del comportamiento del gas radón (^{222}Rn) en los procesos de transferencia en agua y en aire

TESIS DOCTORAL

Aina Noverques Medina

Dirigida por:

Dra. Belén Jeanne Juste Vidal

Dra. María Pino Sancho Fernández

Dr. Gumersindo Jesús Verdú Martín

València, julio de 2022

AGRADECIMIENTOS

Me gustaría dar las gracias a mis directores de tesis, Gúmer, María y Belén, por darme la oportunidad de participar en un proyecto como este. A Gúmer, por seguir confiando en mí año tras año, por todo lo que me ha enseñado en este período y por su dedicación y paciencia. A María, por acompañarme desde que empecé en la UPV, por apostar por mí en los buenos momentos y en los no tan buenos, por las conversaciones infinitas que hemos tenido, profesionales y personales, y por estar siempre pendiente de mí. A Belén, por confiar y darme alas para investigar, por aconsejarme y ayudarme y tenerme siempre en cuenta, para todo. Gracias por hacer que los problemas siempre tengan solución. Sois el mejor ejemplo de sacrificio y trabajo duro, pero, sobre todo, de amabilidad y generosidad. Ojalá podamos seguir trabajando juntas muchos años.

Al LRA, en especial a Pepa, por creer en mi trabajo y por serme compañera siempre de cada proyecto. Por todos los momentos tan divertidos que hemos pasado entre risas y risas. A Marina, por ser tan buena amiga, por lo que nos hemos desahogado juntas y por apoyarme siempre.

A mis compañeros del departamento, por hacer los días más amenos y divertidos, en especial a Sete y Antonella, por ser compañeros y amigos, por reírnos juntos de todo y en cualquier momento. Me habéis ayudado mucho, siempre. A Vicent i Sandra, por ayudarme en parte de la tesis pero también por darme una nueva visión del mundo de la investigación.

A Amandi, por tantísimos ratos de risas, de consejos, por las comilonas y por darme siempre el punto de vista crítico y más racional. Soy muy afortunada de tenerla.

A Raquel y Guada, por enseñarme y cuidarme en el laboratorio cuando casi no sabía ni hacer diluciones. Gracias por motivarme para empezar con esta tesis y por hacerme sentir que puedo contar con vosotras.

A mi profesora Gema, por hacer que me interesara tanto por una ingeniería y alegrarse de cada paso que he dado.

Irene, qué suerte tuvimos de coincidir durante la colaboración docente. Gracias por cada llamada, por cada consejo y por entenderme a la perfección. Tenemos mucho tiempo que recuperar.

Raquel, Sara, Alexa y Rocío, por cuidar la amistad, por hacer malabares con los horarios y seguir reservando tiempo para vernos y ponernos al día. Gracias por escucharme y estar siempre.

A Sara, por arrastrarme durante tantos km, por mantener siempre la sonrisa y la alegría, y por cuidar tanto nuestra amistad. Te debo muchas horas, amiga.

A Illa, per entendre'm, escoltar-me i cuidar-me, per totes les historietes que hem viscut juntes i per totes les que ens queden. I a Jorge, per dissenyar-me una portada tan bonica.

A Marta i Irene, gràcies per la paciència infinita, sobre tot este últim any, i per ser els meus peus en terra. Gràcies per sentir-vos sempre tan orgulloses de mi i viure les meues alegries com si foren vostres.

A Carme, per tota la vida, literal, que portem juntes. Eres amiga i eres germana. Gràcies per estar sempre i per entendre'm com ningú. Hem fet molts mòduls juntes.

A la meua família, la uela Tere, a les meues ties i tios, Xelo, Maite, Mili, Jose, Maribel i Natxo. Gràcies per aconsellar-me i ajudar-me, per les decisions conjuntes, i perquè part de la tesi també és vostra. Sé que sempre esteu quan ho necessite.

I als qui ja no estan, però que se sentirien molt orgullosos de vore fins on he arribat.

A mon pare, per donar-me sempre el punt de vista crític i filosòfic. Gràcies per cada correcció, per cada batalleta i per animar-me sempre i recolzar-me en qualsevol decisió.

Vicent, gràcies per acompanyar-me en este viatge, de tesi i de vida. Gràcies per cuidar-me i entendre'm, per confiar en mi i motivar-me cada dia per seguir endavant en tot. En tu (i els teus esquemes) tot ha sigut més fàcil i divertit. Gràcies per fer-me tan feliç.

Y a ti ma, por sacarme de cada carril en el que me he metido, por tantas horas sentadas en las escaleras y por la paciencia infinita este último año. Gracias por ayudarme, y apoyarme siempre y hacerme ver las cosas con perspectiva. Eres mi persona.

A les meues mestres i professores, per trencar barreres i defendre una educació pública on les dones tenim cabuda.

Aina, juliol de 2022

*Pobles vius i senders infinits,
quin gust sentir-la parlar,
si de carrer i el corral és l'ama,
i ara hi ha un poble que brama en un idioma proscrit.*

Zoo

Resumen

El radón (^{222}Rn) es un gas radiactivo, de origen natural, generado a partir de la desintegración radiactiva del radio (^{226}Ra). Clasificado como elemento cancerígeno por la Organización Mundial de la Salud, es la segunda causa de cáncer de pulmón en la población. La elevada peligrosidad de este gas ha fomentado e impulsado numerosos estudios y análisis dentro del ámbito de la protección radiológica. En este contexto de avance y mejora tecnológica y dada la necesidad de estudiar el comportamiento físico del gas radón, se plantea el objetivo principal de esta investigación.

La presente Tesis Doctoral se basa en un análisis del comportamiento difusivo del gas radón durante su acumulación en aire y en procesos de transferencia en los que coexisten agua y aire.

En primer lugar, se describe un estudio de caso real, basado en mediciones de campo que suponen el punto de partida de la tesis y que han promovido el desarrollo de la metodología necesaria para poder implementar los ensayos a escala laboratorio. Se han llevado a cabo diferentes procedimientos experimentales que permiten monitorizar la evolución de la concentración de radón en el tiempo. Por un lado, se analiza únicamente en aire, cuando el gas se acumula en el interior de depósitos de diferentes volúmenes, y por otro, se estudia la transferencia del radón del agua al aire durante los procesos de acumulación y decaimiento, tanto en condiciones de agua en estado estático como en agitación.

A partir de los resultados obtenidos de concentración de radón en aire, se determina la concentración máxima alcanzable y la tasa de emisión generada por cada fuente muestreada.

Por último, se han desarrollado de modelos dinámicos que permiten reproducir el comportamiento del gas en las diferentes condiciones ensayadas. Esto ha permitido determinar parámetros característicos del proceso difusivo del gas radón como el coeficiente de velocidad de transferencia del gas de un medio a otro y la tasa de emanación del medio acuoso. Se han validado estos resultados mediante la comparación de las concentraciones de radón en agua y en aire estimadas a partir del modelo analítico para las diferentes condiciones ensayadas, con los valores experimentales correspondientes. El ajuste preciso de estos modelos dinámicos permite predecir las concentraciones de radón en otras condiciones de ensayo.

Resum

El radó (^{222}Rn) és un gas radioactiu, d'origen natural, generat a partir de la desintegració radioactiva del radi (^{226}Ra). Classificat com a element cancerigen per la Organització Mundial de la Salut, és la segona causa de càncer de pulmó en la població. L'elevada perillositat d'aquest gas ha promogut i impulsat nombrosos estudis i anàlisi en l'àmbit de la protecció radiològica. En aquest context d'avanç i millora tecnològica i degut a la necessitat d'estudiar el comportament físic del gas radó, es planteja l'objectiu principal d'aquesta investigació.

Aquesta Tesis Doctoral es basa en una anàlisi del comportament difusiu del gas radó durant la seua acumulació en aire i en processos de transferència en els que estan en contacte amb l'aigua i l'aire.

En primer lloc, es descriu un estudi de cas real, basat en mesures de camp que suposa el punt de partida i que han permès el desenvolupament de la metodologia necessària per poder implementar els estudis a escala laboratori. S'han dut a terme diversos procediments experimentals que permeten monitoritzar l'evolució de la concentració de radó en funció del temps. Per una banda, s'analitzen els nivells únicament en aire, quan el gas s'acumula en l'interior de dipòsits de diferents volums i per altra, per estudiar la transferència de radó de l'aigua a l'aire, tant en processos d'acumulació com de decaïment, quan l'aigua es troba en estat estàtic i en agitació.

A partir dels resultats experimentals obtinguts de concentració de radó en aire, es determina la concentració màxima, i la taxa d'emissió generada per cada font mostrejada.

Per últim, s'han desenvolupat models dinàmics que reproduïxen el comportament del gas en les diferents condicions. Açò ha permès determinar paràmetres característics del procés difusiu del gas d'un medi a altre així com la taxa d'emanació de l'aigua. S'han validat els resultats mitjançant la comparació de les concentracions de radó en aigua i en aire estimades amb els valors experimentals del laboratori.

L'ajust precís d'aquests models dinàmics permet predir les concentracions de radó en altres condicions de mostreig.

Abstract

Radon (^{222}Rn) is a naturally occurring radioactive gas generated from radium (^{226}Ra) decay. Classified as a carcinogen by the World Health Organization, it is the second cause of lung cancer. The hazardous nature of this gas has encouraged numerous studies and investigations within the field of radiological protection. In the context of technological progress and improvement, according to the importance of studying radon physical behavior, the main goal of this research is proposed.

This PhD thesis provides an analysis of the diffusive behavior of radon gas during its accumulation in air and in transfer processes in which water and air coexist.

First, a real study case is described, based on field measurements which are the starting point of the thesis and has driven the development of the methodology to be able to implement the tests at laboratory scale. Different experimental procedures have been carried out to evaluate the radon concentration. On the one hand, it is analyzed only in air, when the gas accumulates inside tanks of different volumes and, on the other hand, the radon transfer from water to air, during accumulation and decay processes are studied, both in conditions of water in static state and in turbulence.

From the results obtained for radon concentration in air, the maximum achievable concentration and the emission rate generated by each sampled source is determined.

Finally, dynamic models that reproduce the gas behavior in the different conditions tested have been developed. It has been determined characteristic parameters of the diffusive process of radon gas, such as the gas transfer rate coefficient from one medium to another and the emanation rate from water to air. These results have been validated by comparing the radon concentrations in water and air, estimated from the analytical model for the different conditions tested, with the corresponding experimental values.

Accurate fitting of these dynamic models allows prediction of radon concentrations under other test conditions.

Contenido

CAPÍTULO 1

INTRODUCCIÓN	1
1.1. Antecedentes	1
1.2. Motivación y justificación	5
1.3. Estructura de la tesis	8

CAPÍTULO 2

FUNDAMENTOS TEÓRICOS	11
2.1. Conceptos teóricos	11
2.1.1. Radiactividad	11
2.1.2. Radiación	13
2.1.3. Ley de desintegración radiactiva	18
2.1.4. Efectos de la radiación	19
2.2. El radón	21
2.2.1. Características fisicoquímicas	21
2.2.2. Fuentes de radón	26
2.2.3. Unidades de medida	28
2.2.4. Radón en aire	29
2.2.5. Radón en agua	31
2.2.6. Procesos de liberación a la atmósfera	34
2.2.7. Transporte y movilidad	36
2.2.8. Dosis debidas al radón	38
2.2.9. Efectos sobre la salud	40
2.2.10. Vías de entrada al cuerpo humano y mdelo biocinético	42
2.2.11. Mapa potencial de radón	45

2.3. Marco legislativo	47
2.3.1. Reglamento de Protección Sanitaria contra las Radiaciones Ionizantes.....	47
2.3.2. Legislación referente a los niveles de radón en aire.....	47
2.3.3. Legislación referente a los niveles de radón en agua.....	54
2.3.4. Otras normativas y reglamentos	56

CAPÍTULO 3

OBJETIVOS	59
------------------------	-----------

CAPÍTULO 4

INSTRUMENTACIÓN	61
4.1. Técnicas generales para la medida de radón	61
4.2. Medición de radón en aire	66
4.2.1. Sistema de medición E-PERM, electretes	67
4.2.2. Radon Scout Plus	69
4.2.3. Radon Scout PMT	72
4.3. Medición de radón en agua	74
4.3.1. RAD7-H20	75
4.3.2. Sistema E-PERM-H ₂ O.....	79
4.3.3. Detector de centelleo Hidex 600SL	80
4.4. Determinación de la actividad de las fuentes generadoras de radón utilizadas	82
4.5. Validaciones de los detectores	84
4.5.1. Validación del sistema de electretes E-PERM.....	84
4.5.2. Validación del detector Radon Scout Plus	87
4.5.3. Validación del detector de centelleo Hidex 600 SL.....	88
4.5.4. Validación del RAD7-H20	92

CAPÍTULO 5	
ENSAYOS PRELIMINARES	95
5.1. Introducción sobre los estudios preliminares	95
5.2. Análisis de radón en la Marjal de Peñíscola.....	98
5.2.1. Procedimiento experimental.....	99
5.2.2. Resultados	101
5.2.3. Discusión de resultados	105
5.3. Selección de las fuentes generadoras de radón.....	106
5.3.1. Discusión de resultados	108
5.4. Selección del equipo experimental. Diseño y montaje del equipo experimental y evaluación de la hermeticidad	108
5.4.1. Descripción general del montaje experimental inicial	109
5.4.2. Discusión de resultados	115
5.5. Puesta a punto de los ensayos experimentales. Análisis de la homogeneidad del radón en agua.....	115
5.5.1. Procedimiento experimental.....	115
5.5.2. Resultados experimentales.....	117
5.5.3. Discusión de resultados	119
5.6. Puesta a punto de los ensayos experimentales. Análisis del método de extracción de muestras de agua	119
5.6.1. Procedimiento experimental.....	119
5.6.2. Resultados experimentales.....	121
5.6.3. Discusión de resultados	123
 CAPÍTULO 6	
ENSAYOS EXPERIMENTALES TRANSFERENCIA DE RADÓN	125
6.1. Introducción	125
6.2. Determinación de la concentración de radón en aire.....	128
6.2.1. Análisis de la acumulación de radón en aire.....	128
6.2.2. Análisis comparativo de las diferentes fuentes generadoras de radón.....	137
6.2.3. Discusión de resultados	140

6.3. Determinación de radón en agua. Ensayos con agua en estado estático	140
6.3.1. Análisis de la acumulación de radón en agua.....	140
6.3.2. Análisis del decaimiento de radón en agua	144
6.3.3. Discusión de resultados.....	146
6.4. Determinación de la concentración de radón en aire. Ensayos con agua en estado estático	147
6.4.1. Análisis de la acumulación de radón en aire.....	147
6.4.2. Análisis del decaimiento de radón en aire	150
6.4.3. Discusión de resultados.....	152
6.5. Determinación de radón en agua. Ensayos con agua en agitación	152
6.5.1. Análisis de la acumulación de radón en agua.....	152
6.5.2. Análisis del decaimiento de radón en agua	156
6.5.3. Comparación de resultados de radón en agua. Agua estática vs. Agua en agitación.....	159
6.5.4. Discusión de resultados.....	162
6.6. Determinación de la concentración de radón en aire. Ensayos con agua en agitación	163
6.6.1. Análisis de la acumulación de radón en aire.....	163
6.6.2. Análisis del decaimiento de radón en aire	165
6.6.3. Comparación de resultados de radón en aire. Agua estática vs. Agua en agitación	167
6.6.4. Discusión de resultados.....	170
6.7. Introducción al Capítulo 8: Modelización de la difusión de radón	171

CAPÍTULO 7

PROCESAMIENTO PREVIO A LA MODELIZACIÓN DE LA DIFUSIÓN DE GAS RADÓN	173
7.1. Introducción	173
7.2. Transferencia de radón en aire	175
7.3. Transferencia de radón del agua al aire	179

7.2.1. Transferencia de radón agua-aire. Condiciones de decaimiento de radón.....	181
7.2.2. Transferencia de radón agua-aire. Condiciones de acumulación de radón.....	184

CAPÍTULO 8

MODELIZACIÓN DE LA DIFUSIÓN DE RADÓN.....	189
8.1. Introducción.....	189
8.2. Transferencia de radón en aire: modelización resultados experimentales.	191
8.2.1. Procedimiento experimental.....	191
8.2.2. Resultados.....	192
8.2.3. Discusión de resultados.....	199
8.3. Transferencia de radón agua-aire. Modelización resultados experimentales en decaimiento.	199
8.3.1. Metodología.....	200
8.3.2. Resultados.....	202
8.3.3. Discusión de resultados.....	213
8.4. Transferencia de radón agua-aire. Modelización resultados experimentales en crecimiento.	213
8.4.1. Metodología.....	213
8.4.2. Resultados.....	216
8.4.3. Discusión de resultados.....	226
8.5. Secuenciación para la estimación de las concentraciones.....	227

CAPÍTULO 9

CONCLUSIONES.....	231
Trabajos futuros.....	234

CAPÍTULO 10	
CONTRIBUCIONES EN INVESTIGACIÓN	235
10.1 Publicaciones de investigación	235
10.2 Participación en congresos internacionales.....	236
10.3 Participación en congresos nacionales	238
10.4 Premios y reconocimientos.....	240
Bibliografía	241
ANEXO A.....	249
A.1. Determinación del coeficiente de velocidad de transferencia, k en condiciones de decaimiento.	249
A.2. Determinación de la concentración de radón en aire C_a estimada a partir del coeficiente de velocidad de transferencia, k.....	251
A.3. Determinación de la tasa de emanación, E, en condiciones de crecimiento de radón.....	253
A.4. Determinación de la concentración de radón en aire C_a estimada' en crecimiento, a partir de la tasa de emanación, E, y coeficiente de velocidad de transferencia, k.....	255

Figuras

Figura 1.1. Esquema resumen de la estructura de la tesis.....	10
Figura 2.1. Gráfica de estabilidad nuclear (Web CSN).....	12
Figura 2.2. Distribución de la dosis de la radiación que recibe una persona durante un año (Organización Mundial de la Salud, 2012).....	14
Figura 2.3. Vías de transferencia de los radionucleidos (UNSCEAR, 2000).....	16
Figura 2.4. Cadena de desintegración del Uranio 238 (JANIS 4.0, 2013).....	22
Figura 2.5. Esquema de comportamiento de los descendientes del radón en un espacio cerrado (Modificado de NRC, 1991; Porsterdorfer, 1994; ICRP Part 3, 2017).....	23
Figura 2.6. Orden de magnitud de los niveles de radón en aire (Web CSN).....	31
Figura 2.7. Representación del coeficiente de Ostwald para temperaturas de 0 a 40 °C.....	32
Figura 2.8. Proceso de liberación del radón (Noverques, 2017).....	34
Figura 2.9. Estructura del modelo biocinético para el gas radón. HATM, Human Alimentary Tract Model (Modificado de ICRP, 2006).....	44
Figura 2.10. Mapa potencial de radón en España (Web CSN).....	45
Figura 2.11. Mapa de zonificación por municipio de radón (Web CSN).....	46
Figura 2.12. Soluciones para limitación del radón en edificios de nueva (CTE, DB HS6).....	53
Figura 2.13. Soluciones para la limitación del radón en edificios existentes (CTE, DB HS6).....	54
Figura 4.1. Diagrama de los sistemas de detección de radón en aire utilizados en los ensayos de la Tesis Doctoral.	67
Figura 4.2. Electrete tipo Short Term (ST).....	68
Figura 4.3. Cámaras de radón del sistema E-PERM. (A) Cámara tipo S; (B) cámaras tipo L-OO en posición cerrada.	68
Figura 4.4. Detector Radon Scout Plus.	70

Figura 4.5. Detector Radon Scout PMT.	72
Figura 4.6. Diagrama de los sistemas de detección de radón en agua. 75	
Figura 4.7. Detector de radón RAD7 (DurrIDGE RAD7 Manual, 2015)....	76
Figura 4.8. Espectro de energía alfa ofrecido por la impresora del RAD (DurrIDGE RAD7 Manual, 2015).	76
Figura 4.9. Detector RAD-H2O (RAD H2O Manual, 2020).	77
Figura 4.10. Detector E-PERM-H2O para la medida de radón en agua.79	
Figura 4.11. Detector de radón en agua Hidex 600 SL.	80
Figura 4.12. Racks con viales de muestras de radón en agua.....	81
Figura 4.13. (A) Blindaje del detector de germanio Canberra. (B) Detector de germanio y muestra de una placa petri modelo.....	82
Figura 4.14. Valores experimentales de radón en aire obtenidos en las mediciones con los detectores Radon Scout Plus y Radon Scout PMT.....	88
Figura 5.1. Mapa conceptual de los ensayos preliminares llevados a cabo.....	97
Figura 5.2. Geolocalización de la Marjal de Peñíscola.....	98
Figura 5.3. Ubicación de los puntos de muestreo en la Marjal de Peñíscola.....	100
Figura 5.4. Ejemplo de una de las piedras pechblendas utilizadas.	106
Figura 5.5. Espectro de la muestra de la fuente de radón.....	107
Figura 5.6. Imagen de los dos bidones en los que se realizan los ensayos. (A) Bidón BG, de 120 L. (B) Bidón BP, de 30 L.....	110
Figura 5.7. Dimensiones (en mm) de los dos bidones de HPDE.....	111
Figura 5.8. Decaimiento teórico y experimental del gas radón en el interior del tanque de 120 (A) y 300 L (B) para la validación de su hermeticidad..	114
Figura 5.9. Esquema y dimensionado (en mm) del tanque para el análisis de la homogeneidad del gas radón en el agua.....	116
Figura 5.10. (A) Concentración de radón en agua muestreados en grifo A y grifo B. (B) Ratio de la concentración de radón en agua para ambos grifos.....	118
Figura 5.11. Esquema del tanque para el análisis del método de extracción de muestras de agua.	120

Figura 5.12. Concentración de radón en agua en función del método de extracción utilizado. (A) Concentración de radón en agua medida mediante el grifo y la jeringa. (B) Ratio calculada (Jeringa/Grifo A).....	121
Figura 6.1. Esquema conceptual de los ensayos experimentales llevados a cabo a escala laboratorio.....	127
Figura 6.2. Imagen de los dos bidones con sus respectivos soportes metálicos y el detector Radon Scout Plus.	129
Figura 6.3. Esquema del depósito experimental para el análisis de las fuentes en aire. Tanque de 120 L (A); tanque de 30 L (B).....	129
Figura 6.4. Radón en aire generado por la fuente F1 en los depósitos de 30 L y 120 L.....	132
Figura 6.5. Radón en aire generado por la fuente F2 en los depósitos de 30 L y 120 L.....	134
Figura 6.6. Radón en aire generado por la fuente F3 en los depósitos de 30 L y 120 L.....	136
Figura 6.7. Radón en aire generado por las fuentes F1, F2 y F3 en el depósito de 30 L.	138
Figura 6.8. Radón en aire generado por la fuente F1, F2 y F3 en el depósito de 120 L.	139
Figura 6.9. Equipo experimental dimensionado para la determinación del efecto del volumen de agua en los niveles de radón. (A) 25 L de agua. (B): 50 L de agua.....	141
Figura 6.10. Comparación de la concentración de radón en agua medida durante el enriquecimiento para volúmenes de 25 y 50 L de agua en estático en el interior del tanque.	143
Figura 6.11. Equipo experimental dimensionado para el análisis del decaimiento del gas radón con agua en estado estático. Ensayo: 25 L con fuente. Ensayo: 25 L agua sin fuente.	144
Figura 6.12. Concentración de radón en agua para decaimiento del radón en agua en estado estático.....	146
Figura 6.13. Comparación de la concentración de radón en aire creciente medida para volúmenes de 25 y 50 L de agua en estático en el interior del tanque.....	149
Figura 6.14. Concentración de radón en aire para enriquecimiento y decaimiento del radón en agua en estado estático.	151

Figura 6.15. Equipo experimental dimensionado para la determinación del efecto del estado del agua en los niveles de radón. Ensayo con 25 L de agua. Ensayo 50 L de agua.....	153
Figura 6.16. Comparación de la concentración de radón en agua en volúmenes de 25 L y 50 L en agitación.....	155
Figura 6.17. Equipo experimental dimensionado para el análisis del decaimiento del gas radón con agua en agitación. Ensayo con 25 L con fuente. Ensayo con 25 L de agua y sin fuente.....	156
Figura 6.18. Concentración de radón en agua para decaimiento del radón en agua en estado agitación.....	158
Figura 6.19. Comparación de la concentración de radón en agua en estado estático y en agitación. (A) Ensayos con 25 L de agua. (B) Ensayos con 50 L de agua.....	159
Figura 6.20. Comparación de la concentración de radón en 25 L de agua en estado estático y agitación durante el proceso de decaimiento.....	161
Figura 6.21. Concentración de radón en aire en 25 y 50 L de agua en agitación.....	164
Figura 6.22. Concentración de radón en aire para enriquecimiento y decaimiento del radón en agua en estado de agitación.....	166
Figura 6.23. Comparación de la concentración de radón en aire cuando el agua está estática y en agitación. (A) Ensayos con 25 L de agua. (B) Ensayos con 50 L de agua.....	168
Figura 6.24. Comparación de la concentración de radón en aire con 25 L de agua en estado estático y agitación incluyendo el proceso de decaimiento.....	169
Figura 7.1. Esquema resumen de la distribución del capítulo 7.....	175
Figura 7.2. Esquema de las variaciones de radón en aire en el tanque experimental.....	177
Figura 7.3. Esquema de las variaciones de radón en agua y aire en el tanque experimental cuando el agua ya está enriquecida previamente.....	181
Figura 7.4. Esquema de las variaciones de radón en agua y aire en el tanque experimental con aporte de radón.....	185
Figura 8.1. Esquema conceptual del Capítulo 8.....	190
Figura 8.2. Acumulación de radón en aire generado por F1 en los depósitos de 30 y 120 L.....	192
Figura 8.3. Acumulación de radón en aire generado por F2 en los depósitos de 30 y 120 L.....	194
Figura 8.4. Acumulación de radón en aire generado por F3 en los depósitos de 30 L y 120 L.....	196

Figura 8.5. Resultados experimentales de radón en agua cuando se dispone de 25 L de agua en estático, incluyendo el punto de corte para la modelización.....	203
Figura 8.6. Resultados experimentales de radón en aire cuando se dispone de 25 L de agua en estático, incluyendo el punto de corte para la modelización.....	204
Figura 8.7. Resultados de concentración de radón en agua (Cw) experimental y estimada, incluyendo los límites superior e inferior en condiciones estáticas para 25 L.....	205
Figura 8.8. Verificación de la incertidumbre asociada al coeficiente de velocidad de transferencia.	206
Figura 8.9. Resultados de concentración de radón en aire (Ca) experimental y estimada, incluyendo los límites superior e inferior para 25 L de agua estática.....	207
Figura 8.10. Resultados experimentales de radón en agua cuando se dispone de 25 L de agua en agitación, incluyendo el punto de corte para la modelización.....	208
Figura 8.11. Resultados experimentales de radón en aire cuando se dispone de 25 L de agua en agitación, incluyendo el punto de corte para la modelización.....	209
Figura 8.12. Resultados de concentración de radón en agua (Cw) experimental y estimada, incluyendo los límites superior e inferior para 25 L de agua en condiciones de agitación.....	210
Figura 8.13. Verificación de la incertidumbre asociada al coeficiente de velocidad de transferencia en agitación.....	211
Figura 8.14. Resultados de concentración de radón en aire (Ca) experimental y estimada, incluyendo los límites superior e inferior para 25 L de agua en condiciones de agitación.....	212
Figura 8.15. Resultados de concentración de radón en agua estimada (C'w) en 25 L de agua estática.....	217
Figura 8.16. Resultados de concentración de radón en agua estimada (C'w) en 50 L de agua estática.....	218
Figura 8.17. Resultados de concentración de radón en agua estimada (C'w) en 25 L de agua en agitación.....	218
Figura 8.18. Resultados de concentración de radón en agua estimada (C'w) en 50 L de agua en agitación.....	219
Figura 8.19. Resultados de concentración de radón en aire (C'a) en 25 L de agua estática. Escala logarítmica.....	221

Figura 8.20. Resultados de concentración de radón en aire (C'a) en 25 L de agua estática. Ampliación a escala lineal.....	221
Figura 8.21. Resultados de concentración de radón en aire (C'a) en 50 L de agua estática. Escala logarítmica.....	222
Figura 8.22. Resultados de concentración de radón en aire (C'a) en 50 L de agua estática. Ampliación a escala lineal.....	222
Figura 8.23. Resultados de concentración de radón en aire (C'a) en 25 L de agua en agitación. Escala logarítmica.....	223
Figura 8.24. Resultados de concentración de radón en aire (C'a) en 25 L de agua en agitación. Ampliación a escala lineal.....	223
Figura 8.25. Resultados de concentración de radón en aire (C'a) en 50 L de agua en agitación. Escala logarítmica.....	224
Figura 8.26. Resultados de concentración de radón en aire (C'a) en 50 L de agua en agitación. Ampliación a escala lineal.....	224
Figura 8.27. Diagrama de flujo del proceso de estimación de la concentración de radón en aire en contacto con agua en condiciones de disminución del gas.....	228
Figura 8.28. Diagrama de flujo del proceso de estimación de la concentración de radón en aire en condiciones de aumento del gas.....	229

Tablas

Tabla 2.1. Valores promedio de dosis efectiva debidas a la radiación natural (UNSCEAR, 2000).....	15
Tabla 2.2. Propiedades fisicoquímicas de los isótopos del radón (CSN, 2012).....	23
Tabla 2.3. Energía potencial alfa por átomo y por actividad para los descendientes del gas radón (ICRP 137, Part 3, 2017).	25
Tabla 2.4. Deposición de aerosoles de los descendientes del radón inhalados en las diferentes regiones del tracto respiratorio (ICRP 137, Part 3, 2017).....	26
Tabla 2.5. Concentración de uranio en diferentes tipos de rocas (Quindós, 1995).....	27
Tabla 2.6. Coeficientes de dosis efectiva (en Sv·Bq-1) para radón inhalado (ICRP 137, Part 3, 2017).	39
Tabla 2.7. Resumen de los niveles de referencia de radón en aire.....	48
Tabla 2.8. Resumen de los valores paramétricos de radón en agua.....	55
Tabla 3.1. Resumen de la relación objetivos-tareas de la investigación..	60
Tabla 4.1. Resumen duración de cada muestreo en función del tipo de muestreo (Norma ISO 11665:1, 2016).	63
Tabla 4.2. Métodos para la medida de radón en viviendas (Manual OMS, 2015).....	66
Tabla 4.3. Especificaciones técnicas del detector E-PERM (Manual E-PER, 2011).	69
Tabla 4.4. Especificaciones técnicas Radon Scout Plus (Radon Scout Plus Manual, 2017).....	71
Tabla 4.5. Especificaciones técnicas Radon Scout PMT (Radon Scout PMT Manual, 2011).	73
Tabla 4.6. Especificaciones técnicas del RAD7 (DurrIDGE RAD7 Manual, 2015).....	78
Tabla 4.7. Especificaciones técnicas Hidex 600SL (Hidex 600 SL Specifications, 2015)	81

Tabla 4.8. Especificaciones técnicas del detector de germanio BEGe 3830 (Broad Energy Germanium Detectors. Canberra, 2016).	83
Tabla 4.9. Resultados obtenidos en las mediciones de radón en aire en intercomparaciones pruebas de aptitud con electretes.	85
Tabla 4.10. Condiciones de probabilidad del parámetro utest (IAEA, 2002).....	86
Tabla 4.11. Resumen resultados exactitud del método.....	87
Tabla 4.12. Resultados obtenidos en la intercomparación de radón en agua en las muestras A y B medida con Hidex 600 SL (2019).	90
Tabla 4.13. Resultados ofrecidos por la entidad organizadora de la intercomparación (2019).....	90
Tabla 4.14. Resultados finales del ejercicio de intercomparación (2019).....	91
Tabla 4.15. Resultados obtenidos por el laboratorio en la intercomparación de radón en agua (2021)	91
Tabla 4.16. Resultados ofrecidos por la entidad organizadora de la intercomparación (2021).....	91
Tabla 4.17. Resultados finales del ejercicio de intercomparación (2021).....	92
Tabla 4.18. Resultados obtenidos por el laboratorio en la intercomparación de radón en agua en las muestras A y B, medida con RAD7-H20 (2019)...	92
Tabla 4.19. Resultados finales del ejercicio de intercomparación, mediante RAD7-H20 (2019).	93
Tabla 5.1. Concentración de radón en agua en la Marjal de Peñíscola.....	102
Tabla 5.2. Resultados de informes anuales de las medidas de radón en la planta de pretratamiento de aguas residuales.....	104
Tabla 5.3. Niveles de radón en agua en una vivienda.....	105
Tabla 5.4. Caracterización de las tres fuentes generadoras de radón.	107
Tabla 5.5. Nivel de radón en aire de fondo en el laboratorio durante la realización de los ensayos experimentales.	113
Tabla 5.6. Resumen características procedimiento experimental del estudio de la homogeneidad del radón en el interior del depósito.....	117
Tabla 5.7. Resumen características procedimiento experimental del ensayo.....	121

Tabla 6.1. Tiempos de ensayo para cada fuente generadora de radón.....	130
Tabla 6.2. Resumen características procedimiento experimental de la acumulación de radón en aire.	131
Tabla 6.3. Cálculo de la variación de concentración de radón en aire en ambos depósitos para la fuente F1.	133
Tabla 6.4. Cálculo de la variación de concentración de radón en aire en ambos depósitos para la fuente F2.	135
Tabla 6.5. Cálculo de la variación de concentración de radón en aire en ambos depósitos para la fuente F3.	137
Tabla 6.6. Resumen características del procedimiento experimental de la acumulación de radón en agua en estado estático.	142
Tabla 6.7. Resumen características procedimiento experimental decaimiento de radón en agua estática.	145
Tabla 6.8. Resumen características del procedimiento experimental del estudio del radón en aire en condiciones de agua estática	148
Tabla 6.9. Resumen características del procedimiento experimental del análisis del proceso de decaimiento y disminución de la concentración de radón en aire.	150
Tabla 6.10. Resumen características procedimiento experimental para el análisis del enriquecimiento del agua en estado turbulento	154
Tabla 6.11. Resumen características procedimiento experimental del estudio del decaimiento de la concentración de radón en agua en agitación.....	157
Tabla 6.12. Resumen de las condiciones de ensayo para un volumen de 25 L de agua en estado estático y en agitación, durante el enriquecimiento.....	159
Tabla 6.13. Resumen de las condiciones de ensayo para un volumen de 25L de agua en estado estático y en agitación incluyendo decaimiento....	161
Tabla 6.14. Resumen características procedimiento experimental del análisis de la acumulación de radón en aire en contacto con agua en agitación.....	163
Tabla 6.15. Resumen características del procedimiento experimental del estudio del decaimiento de la concentración de radón en aire en contacto con agua en agitación	166
Tabla 6.16. Resumen de las condiciones de ensayo para un volumen de 25 L de agua en estado estático y en agitación.....	167

Tabla 6.17. Resumen de las condiciones de ensayo para un volumen de 25L de agua en estado estático y en agitación incluyendo decaimiento....	169
Tabla 8.1. Ajuste exponencial de concentración de radón en aire para la fuente F1.....	193
Tabla 8.2. Ajuste exponencial de concentración de radón en aire para la fuente F2.....	195
Tabla 8.3. Ajuste exponencial de concentración de radón en aire para la fuente F3.....	197
Tabla 8.4. Tasas de emisión para cada una de las fuentes empleadas.	197
Tabla 8.5. Parámetros utilizados para la modelización de la ecuación (8.2) y (8.3).....	202
Tabla 8.6. Parámetros utilizados para la modelización de la ecuación (8.5) y (8.7).....	216

Glosario de términos

A	Actividad de la muestra (Bq)
C_a	Concentración de radón en aire en decaimiento ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)
$C_{a_{exp}}$	Concentración de radón en aire experimental ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)
C'_a	Concentración de radón en aire estimada en acumulación a partir de iteración ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)
$C_{a_{max}}$	Concentración de radón en aire máxima alcanzable ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)
C_{Rn}	Concentración de radón, valor genérico ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)
C_W	Concentración de radón en agua estimada en decaimiento a partir de iteración ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)
$C_{W_{exp}}$	Concentración de radón en agua experimental ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)
C'_W	Concentración de radón en agua estimada en acumulación a partir de iteración ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)
D	Dosis absorbida (Gy)
D_{MW}	Coefficiente de difusión de radón en agua ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)
D_{MA}	Coefficiente de difusión de radón en aire ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)
$D_{T,R}$	Dosis absorbida promediada sobre el órgano o tejido T, procedente de la radiación R (Gy)
E_{agua}	Tasa de emanación de radón en agua ($\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$)
E_{aire}	Tasa de emanación de radón en aire ($\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$)
E'_{aire}	Tasa de emanación de radón en aire por unidad de superficie ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$)
$E_{exhalación}$	Tasa de exhalación de gas radón ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$)
E_f	Dosis efectiva (Sv)
E_t	Energía media de retroceso (keV)
F	Factor de equilibrio del radón (adimensional)
$F(t)$	Flux de gas radón desde el agua al aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$)
$H_{T,R}$	Dosis equivalente (Sv)
\vec{J}_{Rn}	Vector densidad de flujo efectiva del radón ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$)
k	Coefficiente de velocidad de transferencia ($\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$)
N	Número de núcleos radiactivos por unidad de tiempo ($\text{Bq}\cdot\text{s}$)

S	Superficie de contacto agua-aire (m^2)
S_{fuente}	Superficie de la fuente (m^2)
T_0, T_1	Intervalos de tiempo para iteraciones (h)
$T_{1/2}$	Periodo de semidesintegración (h)
V_W	Volumen de agua (m^3)
V_a	Volumen de aire (m^3)
w_R	Factor de ponderación de la radiación (adimensional)
w_T	Factor de ponderación tisular del órgano o tejido T (adimensional)
α	Coefficiente de Ostwald (adimensional)
λ	Constante de desintegración (h^{-1})
ϕ	Tasa de emisión ($Bq \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$)
ϕ_{aire}	Tasa de emisión de radón en aire ($Bq \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$)

Acrónimos

ADN	Ácido desoxirribonucleico
ALARA	Criterio tan bajo como sea razonablemente posible (<i>As Low As Reasonably Achievable</i>)
ARN	Ácido ribonucleico
BOE	Boletín Oficial del Estado
CSN	Consejo de Seguridad Nuclear
CTE	Código Técnico de la Edificación
DB HS	Documento Básico de Salubridad
EEC	Concentración Equivalente en Equilibrio (<i>Equilibrium Equivalent Concentration</i>)
ENAC	Entidad Nacional de Acreditación española
EPA	Agencia de Protección Ambiental de Estados Unidos
EPAR	Estación de Pretratamiento de Aguas Residuales
EURATOM	Comunidad Europea de la Energía Atómica (<i>European Atomic Energy Community</i>)
GS	Guía de Seguridad del Consejo de Seguridad Nuclear
HDPE	Polietileno de alta densidad (<i>High Density Polyethylene</i>)
IAEA	Organismo Internacional de la Energía Atómica (<i>International Atomic Energy Agency</i>)
IARC	Agencia Internacional de Investigación del Cáncer (<i>International Agency for Research on Cancer</i>)
ICRP	Comisión Internacional de Protección Radiológica (<i>International Commission on Radiological Protection</i>)
INT	Informes Técnicos del Consejo de Seguridad Nuclear
ISIRYM	Instituto Universitario de Seguridad Industrial, Radiofísica y Medioambiental
ISO	Organización Internacional de Normalización (<i>International Organization for Standardization</i>)
IPROMA	Investigación y Proyectos Medio Ambiente S.L.

JANIS	<i>Java-based nuclear information software</i>
LARUC	Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Cantabria
LDPE	Polietileno de baja densidad <i>(Low Density Polyethylene)</i>
LRA-UPV	Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universitat Politècnica de València
LSC	Contador de centelleo líquido <i>(Liquid Scintillation Counter)</i>
NTP	Notas Técnicas de Prevención
OMS	Organización Mundial de la Salud
PR	Protección Radiológica
RD	Real Decreto
RPRSI	Reglamento de Protección Sanitaria contra las Radiaciones Ionizantes
SENUBIO	Seguridad Nuclear y Bioingeniería de las Radiaciones Ionizantes
UNSCEAR	Comité Científico de las Naciones Unidas para el Estudio de los Efectos de las Radiaciones Atómicas <i>(United Nations. Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation)</i>
UE	Unión Europea
UNE-EN	Una Norma Española. Asociación Española de normalización
USC	Universidad Santiago de Compostela
WL	Working Level (unidad de medida)
WLM	Working Level Month (unidad de medida)

CAPÍTULO 1

INTRODUCCIÓN

En este capítulo se presentan los antecedentes de la investigación que se ha llevado a cabo a través de una revisión bibliográfica en profundidad, así como la motivación, que detalla las razones por las que se ha considerado imprescindible seguir avanzando en el campo de la medición de radón. Por último, se introduce la estructura de la Tesis Doctoral.

1.1. Antecedentes

El radón es un gas radiactivo considerado como la primera fuente de radiación natural a la que están expuestos los humanos, que emana de suelos y rocas y tiende a acumularse en espacios cerrados con poca o nula ventilación. En menor medida, el radón también puede liberarse desde materiales de construcción y aguas, tanto subterráneas como superficiales.

A partir de un estudio europeo sobre calidad de aire en el interior de viviendas, la Organización Mundial de la Salud (OMS) detectó, en 1979, los posibles efectos derivados de la exposición al radón residencial. Su clasificación como elemento carcinógeno en 1988 impulsó la creación de comités científicos que analizaban los riesgos asociados a su inhalación.

En 2005, se inició el Proyecto Internacional de Radón (OMS) cuyo objetivo era la identificación de estrategias y métodos que permitiesen disminuir el impacto del gas sobre la salud de la población. De ahí surgió el *Manual de la OMS sobre el radón en interiores* (OMS, 2015) una guía de los aspectos principales a tener en cuenta acerca del radón y su peligrosidad para la salud de los individuos.

En las últimas décadas, la preocupación por el riesgo asociado a la inhalación del gas radón ha ido en aumento y se ha puesto de manifiesto en el incremento de los estudios e investigaciones en este campo. Estos trabajos se basan en tres líneas principales en función del origen de la fuente de radón: estudios sobre suelos, sobre materiales en la construcción y sobre el agua.

Dada la elevada variabilidad del gas radón, y la compleja dinámica que rige su movimiento, los estudios se centran en caracterizar las variaciones temporales y estacionales de su concentración tanto en periodos cortos (Siino et.al., 2019) como a lo largo de décadas. Los resultados ofrecen una visión amplia de las fluctuaciones del gas, así como de la influencia de factores climatológicos en la misma (Steck, 1992 y 2009).

A nivel nacional, diversos grupos de investigación han centrado sus estudios en el análisis de los niveles de radón en lugares de trabajo ubicados en sótanos (Font et. al, 2008) y en correlacionar estas concentraciones con las características geológicas presentando valores elevados en los interiores situados sobre zonas con materiales volcánicos (Moreno et. al, 2008). Se observa que la distribución geográfica del radón también se correlaciona con características estructurales de la zona como puedan ser fracturas o puntos de emisión, y que a su vez coinciden con manifestaciones geotérmicas como fumarolas (Hernández et. al, 2004).

Las exigencias europeas en materia de salud y protección frente al radón promueven nuevas metodologías que requieren la actualización del ya existente mapa potencial de radón español. Estos nuevos mapas describen las zonas que presentan un alto potencial de exposición al gas, ampliando hasta el 12% la probabilidad de encontrar una zona con una concentración determinada, mejorando el mapa previo que fijaba esta probabilidad en un 10% (Fernández et al., 2021).

La segunda línea de investigación, gira en torno a los materiales de construcción como fuente generadora de radón y está siendo objeto de análisis y estudio prioritario recientemente. De entre los principales materiales de construcción en nuestro país se ha estudiado el riesgo radiactivo en el sector cerámico (azulejos, ladrillos, etc.) y del hormigón. Por el momento, se considera que estos materiales fabricados en España están exentos de comprobar sus emisiones radiactivas (Piedecausa-García, 2011) pues se considera que no contribuyen de manera significativa al aumento de la exposición al radón (Chen et. al, 2010). Sin embargo, el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), único organismo competente en materia de seguridad nuclear y protección radiológica fomenta el estudio de las tasas de emisión y exhalación de estos materiales y, por tanto, mantiene esta vía abierta para futuras investigaciones.

La tercera línea de investigación se centra en la presencia de gas radón en aguas subterráneas y superficiales. Al hablar de aguas, el riesgo de exposición al gas aumenta tanto por su posible ingesta como por su inhalación cuando el radón es liberado desde la fuente acuática.

Las investigaciones centradas en el medio acuoso se basan principalmente en tres áreas:

- Estudio de los niveles de radón en aguas subterráneas, superficiales, ríos, lagos, etc., con el objetivo de realizar mapeos de las diferentes zonas muestreadas.
- Análisis y utilización del radón como trazador para detectar descargas en agua.
- Cálculo de concentraciones y dosis que influyen en los niveles de radón en aire debido a su contenido en agua en balnearios, industrias, etc. Se observan cantidades de radón en interiores por encima del límite legislativo pese a que, en algunos casos, la cantidad de radón en agua no supera los valores paramétricos fijados para aguas de consumo humano (Nikolov et. al, 2012; Walczak et al., 2016; Kulali,2021).

A nivel nacional, algunos estudios llevados a cabo en Tenerife se centran en realizar medidas de radón en aire durante periodos de 3 meses en el interior de galerías de agua con el objetivo de cuantificar cuanto gas es exhalado desde la fuente acuática. En diversos puntos muestreados se excede el límite legislativo, lo que supone un riesgo para los trabajadores (Santamarta et. al.,2020).

De igual modo, y dado el reciente aumento de balnearios y *spas* en España, se han tenido que incrementar las mediciones de la radiactividad tanto del agua utilizada como del aire del interior. En algunos casos se han observado altos niveles de radón en aire lo que ha ocasionado la necesidad de estudiar las concentraciones en agua como posible fuente generadora. Se pueden observar variaciones en los niveles de radón que oscilan desde los 4 Bq·L⁻¹ hasta los 824 Bq·L⁻¹ (Soto et. Al., 1995) o incluso 2000 Bq·L⁻¹ (Ródenas et al, 2007). De igual manera, se analiza el contenido en radio, que también es elevado.

Se ha observado que, pese a disponer de niveles de radón en agua por debajo del límite establecido por el CSN, con un promedio cercano a los 50 Bq·L⁻¹, los niveles de radón en aire en ese mismo balneario alcanzan los 1664 Bq·m⁻³. Esto implica que niveles bajos de concentración en agua pueden suponer una fuente muy importante de radón en aire en el interior de los edificios (Moreno et al., 2018).

De forma general, algunos de los puntos más muestreados en España son La Garrotxa (Catalunya), Galicia, Tenerife (Islas Canarias), o Peñíscola (Comunitat Valenciana).

En este sentido y dada la preocupación creciente por el gas, el grupo de investigación SENUBIO del Instituto Universitario de Seguridad Industrial, Radiofísica y Medioambiental (ISIRYM) en colaboración con el Laboratorio de Radiactividad Ambiental (LRA), ambos de la Universitat Politècnica de València (UPV), iniciaron hace más de una década ensayos de radón en aire en diferentes ubicaciones (Tondeour et al., 2011; Noverques et al., 2019). Algunos de estos ensayos se centraron en el análisis de la concentración de radón en aire en una planta de pretratamiento de aguas residuales cuya posible fuente generadora era el agua captada para su depuración. La particularidad de esta planta de pretratamiento reside en su ubicación geográfica ya que está situada en el paseo marítimo de la ciudad. El confinamiento y aislamiento del exterior para evitar molestias a los residentes es imprescindible por lo que se ha convertido en un espacio con nula ventilación en cuyo interior se agitan grandes cantidades de agua, produciendo la liberación del radón del agua al aire y su acumulación en este. Los niveles de ^{222}Rn en aire medidos excedían los legislativos establecidos, con más de $3000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ en algunos casos. La aplicación de una primera remesa de medidas correctivas redujo los valores hasta los $600 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. Se analizaron también diferentes muestras de agua que, como en otras investigaciones, presentaban niveles de radón que no excedían los $60 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, por debajo del límite legislativo (Juste et al., 2015). De nuevo, se observaban niveles altos de radón en aire generados a partir de un bajo contenido de radón en agua. Siguiendo esta línea de investigación, se analizó parte del agua tratada en la planta que circulaba por la Marjal, de alto valor ambiental y cuyas concentraciones tampoco superaban los valores paramétricos fijados por ley. Asimismo, se analizó la exhalación de radón en la misma zona observándose una elevada variabilidad en las concentraciones medidas, debido en parte a la naturaleza gaseosa del radón (Noverques et al., 2020).

El Instituto Universitario de Seguridad Industrial Radiofísica y Medioambiental (ISIRYM) de la Universitat Politècnica de València ha elaborado estudios de impacto ambiental basados en la simulación de la incidencia radiológica que supone estar expuestos a distintos radionucleidos según diversas vías de exposición (inhalación, ingesta, radiación externa). Además, se han realizado numerosos ensayos de radón en suelo y su consiguiente análisis de tasa de exhalación basados en diferentes métodos. La experimentación, tanto a escala laboratorio como a escala real mediante mediciones de campo, ha permitido aplicar mejoras a las técnicas ya disponibles. De igual manera, se han llevado a cabo numerosas mediciones de radón en agua tanto en industria como en parajes naturales.

1.2. Motivación y justificación

Una parte fundamental en el ámbito nuclear es la Protección Radiológica (PR), cuya finalidad es la de proteger a las personas de todos aquellos riesgos derivados de la exposición a la radiación ionizante. Se pretende ofrecer la protección adecuada a la población y al medio ambiente sin menoscabar los beneficios asociados al uso de las radiaciones como, por ejemplo, el diagnóstico y mejora de tratamientos en medicina, la esterilización de materiales o la medición de sus espesores y densidades en la industria, la optimización de recursos hídricos y control de plagas en agricultura, o los estudios de biología celular y molecular del cáncer y evolución genética.

El elevado desarrollo tecnológico y la transformación vertiginosa que supone el uso de las radiaciones ha promovido la creación de organismos y entidades, leyes, normativas y recomendaciones que fomentan y velan por la protección frente a su exposición. Ya en 1928 se creó la Comisión Internacional de Protección Radiológica (ICRP), el organismo internacional que dicta las recomendaciones básicas de PR, encargada de la coordinación de diferentes comités destinados a analizar los efectos de las radiaciones, definir límites secundarios, la PR en el campo de la medicina, aplicar las diferentes recomendaciones formuladas, así como la PR en medio ambiente. En 1955, la Asamblea General de las Naciones Unidas creó el Comité Científico de las Naciones Unidas para el Estudio de los Efectos de las Radiaciones Atómicas (UNSCEAR), del cual España forma parte desde 2012 y cuyo objetivo es el análisis de las relaciones dosis-efecto de la exposición a la radiación. Asimismo, existe también el Organismo Internacional de Energía Atómica (IAEA) que desarrolla guías y normas, con las recomendaciones de la ICRP obtenidas mediante consenso internacional: países y organizaciones como las Naciones Unidas y la Organización Mundial de la Salud o la Internacional de Trabajo.

Mediante el tratado EURATOM, la Unión Europea (UE) establece las directivas sobre protección radiológica, de obligado cumplimiento para todos los Estados Miembros, quienes las deben transponer a sus respectivas legislaciones según los plazos acordados.

A nivel nacional, el Consejo de Seguridad Nuclear evalúa los niveles de radiación dentro y fuera de instalaciones: en aire, en agua, en materiales de construcción, suelos, alimentos, etc. Los límites de dosis que garantizan la seguridad y el bajo riesgo de exposición se incluyen en el Reglamento de Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes (Real Decreto 783/2001 de 6 de julio), siguiendo las recomendaciones de la ICRP. Estos límites no consideran las dosis que se puedan recibir debido a tratamientos médicos o fuentes naturales como la radiación gamma terrestre; aplicará, por tanto, a aquellas prácticas que presenten riesgo derivado de radiaciones ionizantes que

puedan proceder de una fuente artificial o de una natural como la explotación de minerales radiactivos, por ejemplo.

A pesar de que el gas radón es una de las fuentes principales de radiación natural, con casi un 50% de la dosis total que recibe un individuo al año, su control y/o mitigación no se incluyó en el Real Decreto 783-2001 sino que hubo que esperar hasta 2013, tras la publicación de la Directiva 2013/59/ EURATOM y la Directiva 2013/51/EURATOM. Estas directivas establecen los límites de promedio anual de concentración en aire y en agua, respectivamente.

La creciente preocupación por los riesgos asociados a la inhalación del radón ha promovido la elaboración de guías de seguridad frente a su exposición (Consejo de Seguridad Nuclear) así como numerosas recomendaciones y planes de actuación frente a la inmisión del radón en lugares de trabajo y viviendas. Diversos laboratorios, centros de investigación y universidades de todo el territorio nacional (LRA-UPV, LARUC, Laboratorio de Radón de Galicia, etc.) aúnan sus esfuerzos mediante proyectos individuales o de colaboración para la determinación de los niveles de radón. Para ello, se necesitan diferentes instrumentos de control para la detección del radón y su posterior análisis determinando las medidas adecuadas a implementar en función de los niveles de gas medidos.

El Consejo de Seguridad Nuclear ha impulsado diversos ejercicios de intercomparación, que permiten a los laboratorios llevar a cabo un control de calidad sobre la instrumentación utilizada y hasta del propio procedimiento en sí, con el objetivo de disponer de sistemas de medida uniformes y estandarizados que garanticen la fiabilidad de los resultados. Esta fiabilidad a su vez determinará la adecuada protección radiológica tanto de los individuos ya expuestos al radón como de aquellos que, de forma natural, se encuentren en ubicaciones con alto contenido en este gas y, por tanto, con elevado riesgo de exposición.

Los planes de actuación frente a la exposición del gas, la actualización de la legislación y la inversión pública y privada en este campo ponen de manifiesto la clara necesidad de estudiar el comportamiento del radón en diferentes medios (agua, aire, suelo y materiales de construcción) y cómo se produce la transferencia entre ellos y en qué proporción.

Conocer el comportamiento del radón mejorará la seguridad y protección de los individuos en todas aquellas actividades y procesos en los que se requieran de elevadas cantidades de agua (depuradoras, plantas de tratamiento, industria cerámica, etc.). Además, y dado que existen zonas geográficas con alto contenido en uranio y, por tanto, en radón, sería de gran utilidad conocer, a partir de medidas puntuales en agua, cuál será su concentración cuando entre en una vivienda a través de tuberías o redes de alcantarillado. Cabe destacar también la importancia que tiene el control de los niveles de radón en agua y su liberación al aire en spas y balnearios, cuyas aguas pueden contener, de forma natural,

radio y, a su vez, radón. En estas instalaciones la agitación a la que se ve sometida el agua en los procesos de recarga o limpieza favorecen la liberación del radón al aire. Una vez liberado, el gas tiende a acumularse en el aire si no se dispone de una adecuada ventilación, como sucede en la mayoría de estos emplazamientos por sus características constructivas. El incremento de la concentración en aire supone un elevado riesgo para los trabajadores, quienes están expuestos durante periodos de tiempo mayores. En base a esta problemática, observada en diferentes industrias, se considera imprescindible el estudio, a escala piloto, del fenómeno de transferencia de radón del agua al aire, tanto en condiciones de régimen turbulento como estacionario.

Se ha de tener en cuenta también que cualquier proceso de medida, incluyendo el radón, requiere de controles de calidad internos y externos que garanticen la repetibilidad y veracidad de los resultados obtenidos. Por ello, y particularizando al sistema de medición de radón en agua, IPROMA y el Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Cantabria (LARUC) han organizado hasta tres ejercicios de intercomparación, avalados por el Consejo de Seguridad Nuclear. La intercomparación es una herramienta que permite a los laboratorios de ensayos mejorar sus servicios y competencias técnicas y compararse además con otros laboratorios y con los valores de referencia de los organizadores. En el último ejercicio de intercomparación promovido por el CSN ha participado el grupo ISIRYM-SENUBIO durante la ejecución de esta tesis con resultados satisfactorios.

En este contexto, y debido a la amplia experiencia en el campo de la medición de radón en aire y radón exhalado, ya adquirida en investigaciones previas, se consideró oportuno proceder al estudio del comportamiento del radón en el medio acuoso y cómo se producía su transferencia al aire a escala laboratorio para, posteriormente, reproducir en situaciones e industrias reales este mismo proceso de liberación. Disponer de órdenes de magnitud de este fenómeno, conocer la influencia de variables climatológicas u otras variables como la tasa de emisión de la fuente o la concentración máxima que se alcanzará en el sistema, permiten estudiar los procesos físicos que rigen el comportamiento del gas radón. A escala laboratorio, algunos de estos parámetros pueden considerarse constantes o despreciables lo que facilita la investigación de cómo se produce la generación de radón por parte de una fuente, el aumento de la concentración de este en el agua, su liberación al aire y su consiguiente acumulación en un espacio cerrado.

El trabajo realizado en esta Tesis Doctoral se enmarca dentro de la beca de “Formación de Personal Investigador (FPI)-Subprograma 2 de la convocatoria de 2015” cofinanciada por la Cátedra CSN-UPV Vicente Serradell.

1.3. Estructura de la tesis

El documento de esta Tesis Doctoral está dividido en 10 capítulos, incluyendo este inicial de introducción.

El **Capítulo 1** presenta una visión general de la situación actual acerca del radón. Un repaso por las principales líneas de investigación, y una revisión bibliográfica de libros, normativa y publicaciones existentes hasta el momento. Se incorpora la motivación al realizar esta tesis y su estructura.

El **Capítulo 2** está dividido en tres bloques y se inicia con una breve recopilación de los principales conceptos teóricos en el campo de las radiaciones. El segundo bloque, dedicado íntegramente a las particularidades del radón, incluye desde sus características fisicoquímicas, hasta la movilidad y los procesos de liberación a la atmósfera, así como los efectos sobre la salud. El último bloque contiene un resumen de las normativas vigentes tanto a nivel europeo como nacional.

En el **Capítulo 3** se definen los objetivos principales de esta Tesis Doctoral así como los objetivos específicos que permiten el desarrollo de la investigación.

En el **Capítulo 4** se presenta una clasificación de las técnicas de medida de la concentración de radón y se definen de forma genérica las principales y más utilizadas. Partiendo de ahí, se detalla el principio de funcionamiento de los detectores de radón en agua y aire empleados en esta tesis para determinar su concentración.

En el **Capítulo 5** se describen los ensayos preliminares llevados a cabo durante la investigación. Esta se inicia con las medidas de campo, tanto en agua como en aire y posteriormente, se presenta la puesta a punto necesaria para realizar los ensayos a escala laboratorio. Se incluye la selección de las fuentes, el montaje experimental y su puesta en marcha.

En el **Capítulo 6** se exponen todos ensayos experimentales realizados a escala de laboratorio en los que se analiza la concentración de radón en aire, liberado desde la fuente generadora, así como su acumulación/decaimiento en agua y en aire en los ensayos de transferencia entre ambos medios.

En el **Capítulo 7** se presenta una breve introducción teórica acerca de los fenómenos de transferencia de materia del radón y se exponen las ecuaciones dinámicas que explican el comportamiento del radón en aire y en agua y cómo se produce la liberación de un medio a otro.

En el **Capítulo 8** se recogen las modelizaciones llevadas a cabo. Para ello, se ajustan los resultados experimentales a ecuaciones dinámicas planteadas para aire y para sistemas de contacto agua-aire.

En el **Capítulo 9**, se presentan las conclusiones a las que se ha llegado a lo largo de la investigación. Se incluyen tanto los ensayos preliminares como los ensayos experimentales de transferencia de materia. Asimismo, se plantean nuevas líneas de investigación, y el trabajo futuro a iniciar una vez presentada la Tesis Doctoral.

En el **Capítulo 10** se presentan las contribuciones tanto en artículos como en la participación en congresos internacionales y nacionales que ha generado esta investigación.

Por último, se presenta en **Anexos** los archivos de Matlab (*scripts*) utilizados en el Capítulo 8.

A continuación, se presenta un esquema general de todos los capítulos y los pasos seguidos durante la ejecución de esta Tesis Doctoral.

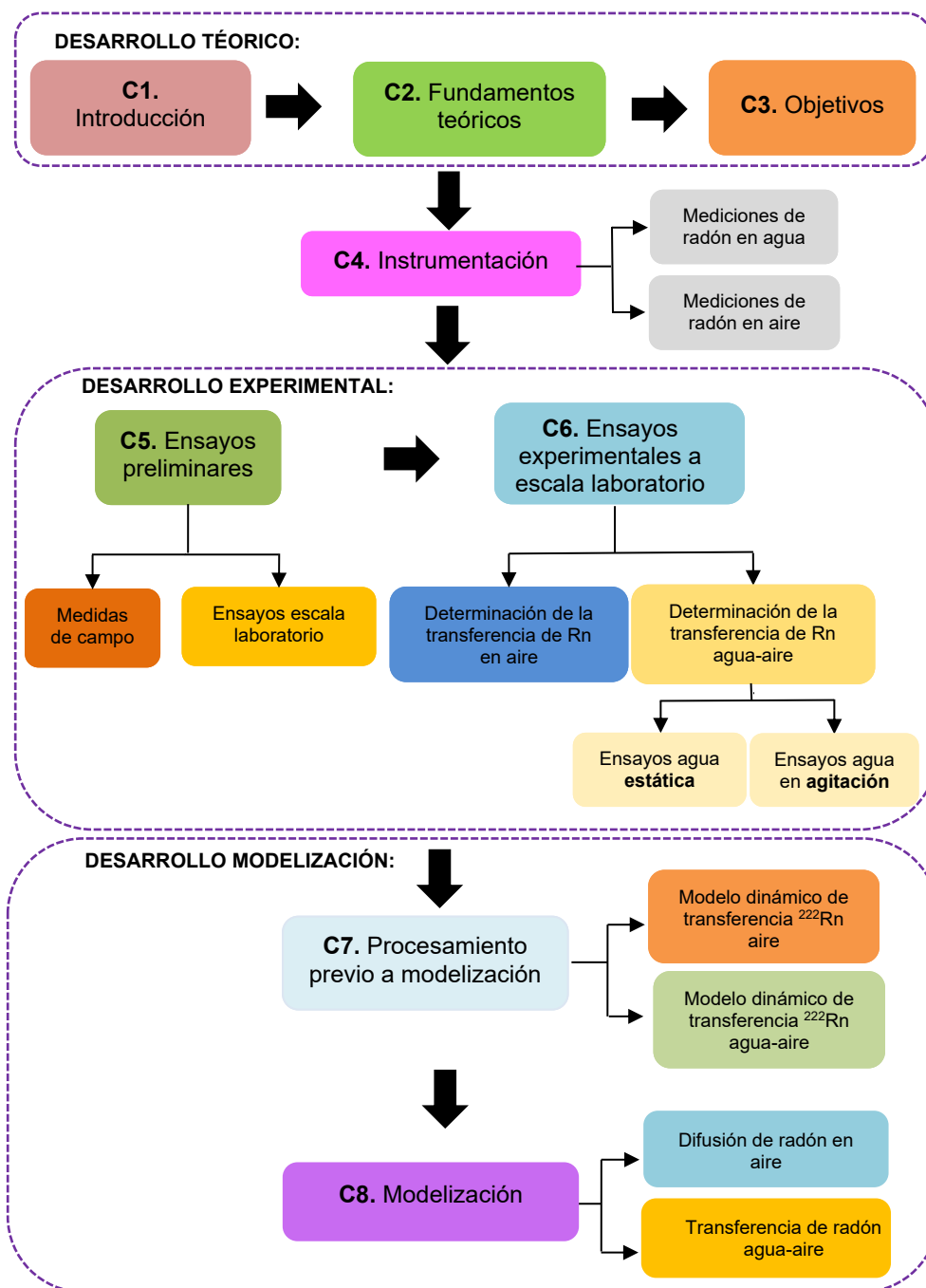


Figura 1.1. Esquema resumen de la estructura de la tesis

CAPÍTULO 2

FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Este capítulo se inicia con la definición de conceptos teóricos como la radiactividad, la radiación y la ley de desintegración que rige el comportamiento de los elementos radiactivos. Asimismo, se describen las características fisicoquímicas del gas radón, qué fuentes generadoras existen, cómo se transporta hasta la atmósfera o las unidades de medida con las que se trabaja.

Se define también la legislación vigente para la regulación de los niveles del gas. Se incluye la normativa europea y la nacional para radón en aire y en agua. Además, se presentan otros reglamentos y documentos técnicos relevantes, a nivel informativo, sobre los diferentes aspectos a tener en cuenta en el ámbito de la protección radiológica.

2.1. Conceptos teóricos

2.1.1. Radiactividad

En condiciones normales, de equilibrio, las partículas que conforman un átomo se mantienen fuertemente unidas entre sí. Sin embargo, hay átomos que pueden tener una falta o exceso de neutrones y, por tanto, no ser estables. Esta inestabilidad genera una liberación de energía y se desintegran mediante la emisión de partículas o radiación, dando lugar a otros átomos (descendientes) más estables. A este fenómeno se le denomina radiactividad.

Las ondas electromagnéticas y las partículas emitidas, se denominan radiación (Monografía sobre las Radiaciones, CSN, 2015).

La estabilidad de un núcleo viene determinada por la relación entre sus protones y neutrones, que caracterizan cada átomo que conforma un elemento químico. El número de protones de un átomo se define mediante el número atómico Z , mientras que la cantidad de nucleones (neutrones y protones) se expresa con el número másico A . Cada núcleo está determinado por la expresión A_ZX

Si el número atómico, Z , es grande, se alcanza la estabilidad si la cantidad de neutrones que contiene es superior a los protones. En cambio, si Z es pequeño ($Z < 30$), esta se consigue cuando el número de protones y neutrones es igual. En la Figura 2.1 se muestra la curva de la estabilidad de los núcleos según su variación de protones y neutrones.

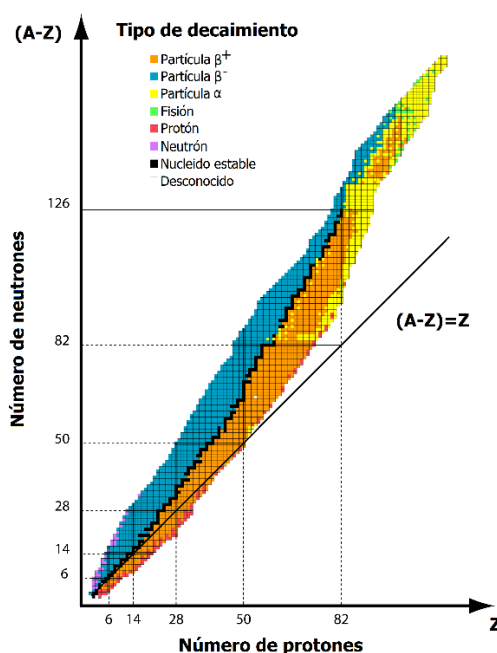


Figura 2.1. Gráfica de estabilidad nuclear (Web CSN)

En la figura se muestra una línea negra, que representa la bisectriz $(A-Z) = Z$. Se observa también un trazado negro de cuadros que delimita la región de estabilidad, es decir, cuando el número de protones es igual al de neutrones.

Los núcleos situados fuera de esta zona de estabilidad son inestables o bien porque tienen un exceso de protones (se sitúan a la derecha) o bien porque tienen un exceso de neutrones (situados a la izquierda). Asimismo, en la gráfica

se observa para cada núcleo qué tipo de desintegración sufre en su decaimiento. Por ejemplo, la zona de color azul representa la emisión de partículas β^- , la naranja β^+ , mientras que la zona de color amarilla indica que esos núcleos emiten partículas α .

La unidad de medida de la radiactividad, es decir, la cantidad de desintegraciones que se produce en el átomo por unidad de tiempo es el Becquerel (Bq).

$$1 \text{ Becquerel (1 Bq)} = 1 \text{ desintegración atómica por segundo (1 dps)}$$

2.1.2. Radiación

La cantidad de radiación que recibe una persona, y, por tanto, el daño al cuerpo humano y los efectos sobre el organismo se caracterizan de forma cuantitativa mediante la dosimetría de radiación que incluye diferentes magnitudes descritas en el Anexo I del Reglamento sobre Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes (RPRSI) (Real Decreto 783/2001). La energía absorbida por unidad de masa se define mediante el concepto Dosis absorbida (D), mostrado en la ecuación ((2.1).

$$D = \frac{d\mathcal{E}}{dm}, \quad (2.1)$$

siendo $d\mathcal{E}$ la energía media impartida por la radiación ionizante a la materia en un volumen (J, Joule) y dm , la masa de la materia contenida en ese volumen (kg). La unidad de medida de la dosis absorbida es el Gray (Gy), siendo 1 Gy equivalente a $1 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}$.

El efecto biológico causado por la radiación depende tanto del tejido sobre el que incide como de la naturaleza de la radiación, y está definido mediante la Dosis equivalente ($H_{T,R}$), que representa la dosis absorbida en el órgano o tejido T para una determinada radiación R, ponderada en función del tipo y la cantidad de radiación según la ecuación (2.2)

$$H_{T,R} = w_R \cdot D_{T,R}, \quad (2.2)$$

siendo w_R el factor de ponderación de la radiación y $D_{T,R}$, la dosis absorbida promediada sobre el órgano o tejido T, procedente de la radiación R. El factor de ponderación se recoge en el Anexo II del RPRSI (Real Decreto 783/2001). La unidad de medida es el Sievert (Sv), que representa la dosis equivalente correspondiente a la dosis absorbida de 1 Gy.

Se define también la Dosis efectiva (E_f), que corresponde a la suma de las dosis equivalentes ponderadas en todos los órganos y tejidos del cuerpo causadas por irradiaciones internas y externas, según la ecuación (2.3)

$$E_f = \sum_T w_T \cdot H_{T,R} = \sum_T w_T \cdot \sum_R w_R \cdot D_{T,R}, \quad (2.3)$$

donde w_T es el factor de ponderación tisular del órgano o tejido T; w_R es el factor de ponderación de la radiación R; y $D_{T,R}$, es la dosis absorbida promediada sobre el órgano o tejido T procedente de la radiación R. El factor de ponderación w_T se recoge también en el RPRSI (Real Decreto 783/2001). La unidad de medida de la Dosis efectiva es el Sievert (Sv).

Según el Comité Científico de las Naciones Unidas sobre los Efectos de la Radiación Atómica (UNSCEAR, 2000) se estima que la dosis media anual que recibe una persona es de 3.7 mSv de los cuales 2.4 mSv son debidos a radiación natural, tal y como se muestra en la distribución de dosis de la Figura 2.2

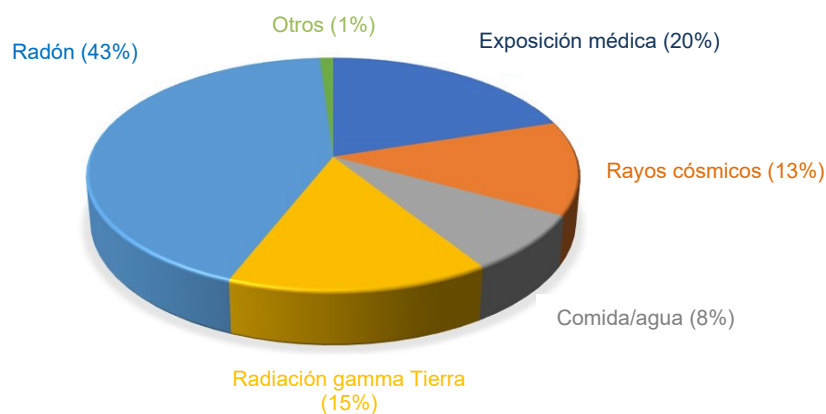


Figura 2.2. Distribución de la dosis de la radiación que recibe una persona durante un año (Organización Mundial de la Salud, 2012).

De entre las fuentes naturales, tal y como se muestra en la Figura 2.2 predomina la exposición al radón, objeto de estudio de esta tesis. De media, la dosis recibida es de 1.2 mSv por año, alcanzando valores de hasta 40 mSv por año en zonas con alto contenido de radón en suelos y terrenos. El 65% de la población está expuesto a dosis de entre 1 y 3 mSv, el 25% a menos de 1 mSv, y el 10 % restante a más de 3 mSv (UNSCEAR, 2000). En la siguiente Tabla 2.1 se muestra el promedio de dosis recibida de fuentes de radiación naturales.

Tabla 2.1. Valores promedio de dosis efectiva debidas a la radiación natural (UNSCEAR, 2000).

Fuente de radiación	Dosis efectiva anual (mSv)	
	Promedio	Rango
Radiación cósmica		
Directamente ionizante y compuesto fotónico	0.28 (0.3) ^a	
Componente neutrónico	0.10 (0.08)	
Radionucleidos cosmogénicos	0.01 (0.01)	
<i>Dosis total de cósmicos</i>	0.39	0.3 - 1.0 ^b
Radiación terrestre externa		
Al aire libre	0.07 (0.07)	
En interiores	0.41 (0.39)	
<i>Dosis total de radiación terrestre externa</i>	0.48	0.3 - 0.6 ^c
Exposición por inhalación		
Series de uranio y torio	0.006 (0.01)	
Radón (²²² Rn)	1.15 (1.2)	
Torón (²²⁰ Rn)	0.10 (0.07)	
<i>Dosis total de exposición por inhalación</i>	1.26	0.2 - 10 ^d
Exposición por ingestión		
⁴⁰ K	0.17 (0.17)	
Series de uranio y torio	0.12 (0.06)	
<i>Dosis total de ingestión</i>	0.29	0.2 - 0.8 ^e
Total	2.4	1 - 10

a Resultados de la evaluación anterior se muestran entre paréntesis

b Rango desde el nivel del mar hasta elevación terreno

c Dependiendo de la composición de radionucleidos de suelos y materiales de construcción

d Dependiendo de la acumulación interior de gas radón

e Dependiendo de la composición de radionucleidos en alimentos y agua potable

Existen, además, diferentes vías por las que los radionucleidos pueden introducirse en el cuerpo humano, necesarias para la evaluación del cálculo de dosis tal y como se muestra en la Figura 2.3.

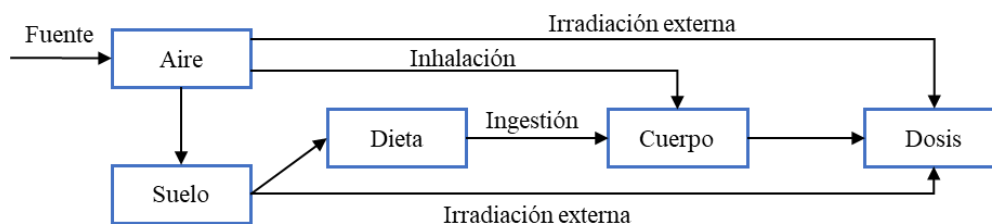


Figura 2.3. Vías de transferencia de los radionucleidos (UNSCEAR, 2000).

El radionucleido puede viajar por el aire, produciendo irradiación externa a los individuos, lo que supone una primera contribución a la dosis recibida. Puede adherirse a los aerosoles y, durante el proceso de inhalación, introducirse en el cuerpo, o bien depositarse sobre el suelo. Una vez ahí, contribuye también a la irradiación externa por el simple hecho de estar emitiendo radiación desde el suelo. Asimismo, puede entrar en la cadena alimentaria bien a través de frutas, verduras y vegetales o bien a través del consumo de aquellos animales que, a su vez, basan su dieta en elementos provenientes de la tierra. Todas estas vías contribuyen al aumento de la dosis que recibe la población.

Se ha de tener en cuenta que, en función del nivel de energía emitida, la radiación se puede clasificar en:

- **Radiaciones no ionizantes:** no disponen de la energía necesaria para arrancar un electrón de su átomo y, por tanto, producir su ionización.
- **Radiaciones ionizantes:** formadas por ondas o partículas de alta frecuencia y corto alcance con la suficiente energía para producir la ionización del átomo y romper así los enlaces atómicos que unen las moléculas.

Según la interacción con la materia, las radiaciones ionizantes se clasifican en radiación alfa, beta o gamma, que se describen a continuación.

Radiación alfa

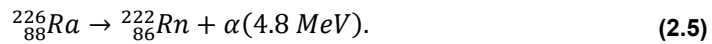
Se denomina desintegración alfa a la emisión espontánea de una partícula alfa de un núcleo cuyo número atómico es grande ($Z > 150$). El núcleo emitido es de Helio (${}^4_2\text{He}$), con dos neutrones y dos protones) y el resultante disminuye en dos unidades el número atómico y en 4 el número másico (A). Este tipo de radiación

presenta una capacidad limitada de penetración en la materia, pero, sin embargo, la energía emitida es elevada.

La reacción llevada a cabo se muestra en la siguiente ecuación (2.4)



En la cadena radiactiva del ${}^{238}\text{U}$, el radón (${}^{222}_{86}\text{Rn}$) se genera a partir de la desintegración del radio (${}^{226}_{88}\text{Ra}$), según la ecuación (2.5) emitiendo radiación alfa con una energía de 4.8 MeV:



Radiación beta

En la desintegración beta se produce la emisión de un positrón o electrón por el núcleo del descendiente, cuyo número atómico (Z) aumenta en una unidad mientras que el número másico (A) se mantiene constante.

La desintegración se produce de forma espontánea dado que la masa del núcleo del descendiente más la partícula alfa (${}^{4}_{2}Y + {}^4_2He$) es menor que la del núcleo iniciador, padre (A_ZX). Su capacidad de penetración es superior a la radiación alfa pero su intensidad es menor. Existen tres procesos de desintegración beta:

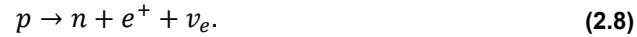
- **Desintegración β^- :** El neutrón (n) se convierte en un protón (p), un electrón (e^-) y un antineutrino ($\bar{\nu}_e$) según la ecuación (2.6)



El núcleo del átomo descendiente quedará según la ecuación (2.7)



- **Desintegración β^+ :** se produce la emisión de positrones. El protón (p) se convierte en neutrón (n), un positrón (e^+) y neutrino (ν_e) según la ecuación (2.8)



El núcleo descendiente resultante quedará según la ecuación (2.9)



- **Captura electrónica:** ciertos electrones de la corteza son capturados por otro núcleo según la ecuación (2.10)



El núcleo del átomo descendiente resultante presenta la desintegración de la ecuación (2.11)



Radiación gamma

Durante el proceso de desintegración gamma, el núcleo del elemento radiactivo emite un fotón de elevada energía (γ). En este caso ni el número másico ni el número atómico del descendiente se ve modificada. Se produce la emisión de radiación gamma cuando el núcleo de un átomo pasa de un estado excitado (${}^A_ZX^*$) a uno de menor energía según (A_ZX) según se muestra en la ecuación (2.12)



2.1.3. Ley de desintegración radiactiva

Todos los núcleos radiactivos, independientemente del proceso de desintegración que lleven a cabo (alfa, beta o gamma) lo hacen de forma aleatoria, sin verse afectados por temperatura, humedad o presión del ambiente. Cada elemento viene caracterizado por su constante de desintegración (λ), que es la probabilidad por unidad de tiempo de que un núcleo se desintegre (α , β o γ).

Esta constante permite determinar la actividad de una muestra a partir del número de núcleos radiactivos en la misma por unidad de tiempo, según la expresión de la ecuación (2.13)

$$A = -\frac{dN}{dt} = \lambda \cdot N(t), \quad (2.13)$$

siendo A la actividad de la muestra, es decir, el número de desintegraciones por unidad de tiempo (Bq); λ la constante de desintegración (s^{-1}) y $N(t)$ el número de núcleos radiactivos de la muestra por unidad de tiempo (Bq·s).

Integrando la ecuación anterior, se puede conocer la actividad real de la muestra según la ecuación (2.14)

$$A(t) = \lambda \cdot N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t}, \quad (2.14)$$

siendo $A(t)$ la actividad de la muestra en un instante determinado (Bq); N_0 el número de núcleos para un tiempo inicial $t = 0$ y t el tiempo transcurrido durante el proceso (s).

Como se observa en la ecuación anterior, todos los procesos de desintegración se rigen por una ecuación exponencial decreciente: la ley de desintegración radiactiva.

Asimismo, es importante definir el parámetro de periodo de semidesintegración, que equivale al tiempo que tarda cada elemento en desintegrar a la mitad los núcleos de una muestra ($N(t) = N_0/2$). Esta constante varía para cada elemento según la ecuación (2.15)

$$T_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda}, \quad (2.15)$$

donde $T_{1/2}$ es el periodo de semidesintegración (s) y λ la constante de desintegración (s^{-1}).

2.1.4. Efectos de la radiación

Durante el proceso de desintegración, los núcleos inestables emiten radiación (alfa, beta, gamma, fotones) que puede interactuar con el medio biológico modificando el funcionamiento de órganos y tejidos celulares. Cuando la radiación ionizante interactúa con la macromolécula de ADN, puede provocar rupturas y modificaciones en la cadena.

En función de la zona de interacción en la célula, la radiación puede depositar su energía por dos métodos diferentes:

- *Acción indirecta*: se produce una absorción de la energía depositada por la radiación durante su interacción con las moléculas de agua. Se forman radicales libres, con alta reactividad química. Los daños ocasionados por los radicales libres a la molécula de ADN varían desde la ruptura del esqueleto en una cadena hasta la propia ruptura de la molécula.
- *Acción directa*: la radiación interacciona directamente con las moléculas clave (ADN, enzimas, ARN, etc.) en el desarrollo de las células y deposita ahí su energía. Se produce la ionización o excitación de las moléculas.

Cuando se produce una irradiación y el daño es severo, se puede producir la muerte celular con bajas o nulas consecuencias si la cantidad de células muertas es pequeña, gracias a la capacidad de reparación del cuerpo humano. Si, por el contrario, el número de células afectadas es elevado debido a una irradiación alta, se puede producir un efecto perjudicial, traducido en un daño mayor (efectos deterministas). Sin embargo, puede no existir la muerte celular, sino que se produzca una alteración del ADN: mutaciones genéticas que favorecen el desarrollo del cáncer o de otras enfermedades genéticas hereditarias (efectos estocásticos).

Existen diferentes factores que influyen en la respuesta de las células frente a la radiación: factores físicos (calidad de la radiación y tasa de dosis); factores biológicos (ciclo celular en el momento de la irradiación o los mecanismos de reparación de la propia célula); o factores químicos (radiosensibilizadores, que aumentan la sensibilidad de las células a la radiación; o radioprotectores, que secuestran los radicales libres reduciendo la acción indirecta de la radiación) (Curso SIR, Ciemat)

Teniendo en cuenta el elevado riesgo de exposición a la radiación ionizante, es importante fijar un nivel de dosis máximo, por encima del cual se consideren como inaceptables las consecuencias que se deriven. Estos valores son definidos en el Reglamento de Protección Sanitaria contra las Radiaciones Ionizantes, RPSRI, (Real Decreto 783/2001) para trabajadores expuestos, público en general, estudiantes o personas embarazadas o en periodo de lactancia. Se definen también los principios básicos de protección radiológica: *justificación*, no adoptar medidas que supongan un mayor beneficio neto a las personas expuestas que el riesgo asociado; *optimización*, basado en el criterio ALARA (*As Low As Reasonable Advisible*) procurando que las dosis, el número de personas expuestas y la probabilidad sean lo más bajo posible; y la *limitación de dosis y riesgo individual*, dado que estas deben estar sujetas a los límites que se han establecido legalmente.

2.2. El radón

2.2.1. Características fisicoquímicas

El radón es un elemento químico con número atómico 86, símbolo Rn, perteneciente a la serie de los gases nobles y, por tanto, inerte químicamente. Su densidad es de $9.73 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ a una temperatura de $0 \text{ }^\circ\text{C}$ y una presión de 1 atm. Su punto de fusión es de $-71 \text{ }^\circ\text{C}$ y el punto de ebullición, $-62 \text{ }^\circ\text{C}$.

Se trata de un gas radiactivo, inodoro, incoloro e insípido producido por la desintegración radiactiva natural del uranio y del torio. Su solubilidad, a $20 \text{ }^\circ\text{C}$ y 1 atm de presión parcial, varía en diferentes medios: en agua, $2.3\cdot 10^8 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$; en glicerina, $1.32\cdot 10^7 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$; $2.9\cdot 10^7 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$ en aceite y $7.4\cdot 10^6 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$ en alcohol etílico (NTP, 1999). En ácidos grasos y triglicéridos, el coeficiente de solubilidad varía, para una temperatura de $25 \text{ }^\circ\text{C}$, entre 1.05 para el ácido fórmico, hasta 4.43 para el acético, 6.52 para el propiónico y 8.10 para el oleico (Nussbaum et al., 1958).

Su coeficiente de difusión varía en función del medio en el que se encuentre: en aire es de $1\cdot 10^{-5} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ y en agua, de $1\cdot 10^{-9} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ (Información sobre el gas radón: USC, 2011)

Existen tres isótopos de gas radón en la naturaleza: el ^{219}Rn , descendiente del uranio 235 (^{235}U) y denominado actinón, con un periodo de semidesintegración de 3.92 segundos. El ^{220}Rn , producido en la cadena de desintegración del torio (^{232}Th), denominado torón, con un periodo de semidesintegración de 54.5 segundos; y el ^{222}Rn , descendiente del uranio (^{238}U) y denominado radón que presenta un periodo de semidesintegración de 3.84 días. Este último es el isótopo más estable y abundante en la naturaleza, por lo que todas las citas en esta tesis hacen referencia a él. La cadena de desintegración de ^{238}U y, por tanto, del ^{222}Rn , se muestra en la Figura 2.4.

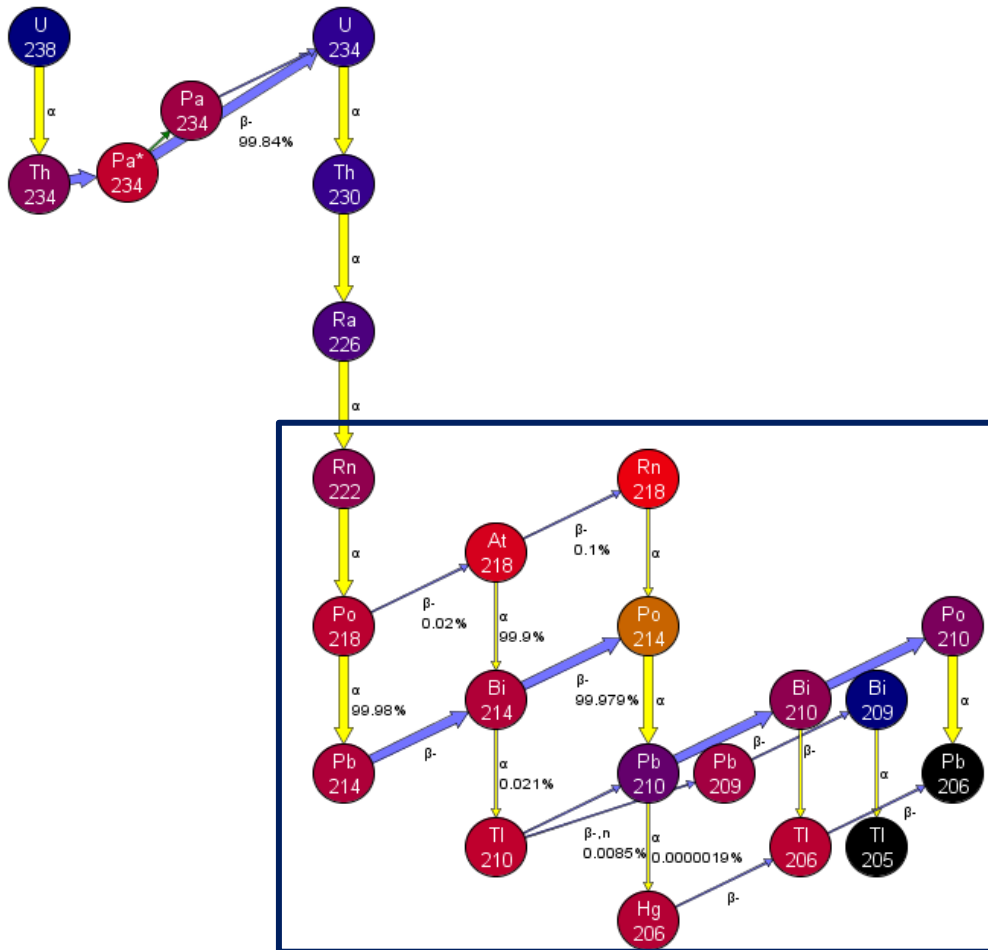


Figura 2.4. Cadena de desintegración del Uranio 238 (JANIS 4.0, 2013).

Los tres isótopos naturales son gases en condiciones normales de temperatura y presión con una capacidad de reacción muy pequeña dado que son nobles. Las propiedades fisicoquímicas varían para cada uno de ellos tal y como se muestra en la Tabla 2.2

Tabla 2.2. Propiedades fisicoquímicas de los isótopos del radón (CSN, 2012)

Parámetro	²²² Rn	²²⁰ Rn	²¹⁹ Rn
Periodo de semidesintegración, $T_{1/2}$	3.84 d	55.8 s	3.98 s
Constante de desintegración, λ	$2.0984 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$	$1.242 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$	$1.74 \cdot 10^{-1} \text{ s}^{-1}$
Energía media de retroceso, E_t	86 keV	103 keV	104 keV
Coefficiente de difusión en aire, D_{MA}	$1 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$		
Coefficiente de difusión en agua, D_{MW}	$1 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$		

Los tres isótopos se desintegran en radionucleidos sólidos de vida relativamente corta, según sus respectivas cadenas de desintegración. Su comportamiento en espacios cerrados se muestra en la siguiente Figura 2.5

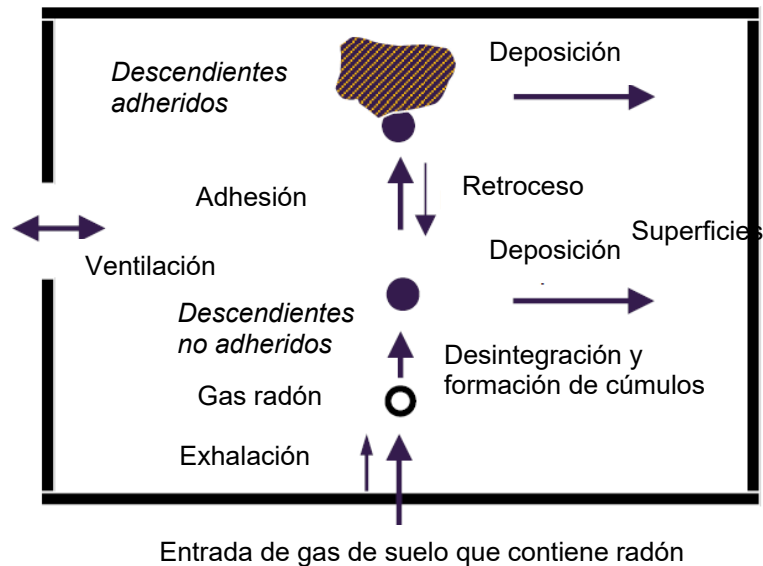


Figura 2.5. Esquema de comportamiento de los descendientes del radón en un espacio cerrado (Modificado de NRC, 1991; Porsterdorfer, 1994; ICRP Part 3, 2017)

Cuando se desintegra el gas radón, los radionucleidos formados reaccionan de forma rápida (<1 segundo) con gases y vapores del ambiente y crecen mediante la formación de cúmulos (*cluster*) formando partículas de tamaño de 1nm, que se denominan descendientes no adheridos. Estos, pueden a su vez adherirse a los aerosoles de la atmósfera entre 1 y 100 segundos, creando los descendientes adheridos, tal y como se muestra en la Figura 2.5. Todos ellos, adheridos y no adheridos, pueden depositarse sobre las superficies.

De los tres isótopos del radón, el más estable y abundante en la naturaleza, con una vida media mayor, es el ^{222}Rn , por lo que la gran mayoría de investigaciones se centran en su estudio y análisis. Inicia su desintegración emitiendo partículas alfa, de corto alcance, con una energía de 5.49 MeV.

Sus descendientes, según la cadena de desintegración son: ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po y ^{210}Pb tal y como se muestra en el recuadro de la Figura 2.4.

Con una vida media de 3.05 minutos, los núcleos del primer descendiente, el ^{218}Po , elemento sólido, emite partículas alfa con una energía de 6 Mev. Cuando se desintegra, emitiendo también partículas alfa, se convierte en ^{214}Pb , elemento sólido con vida media de 26.8 minutos. Este a su vez, a través de la emisión de partículas beta, se desintegra en ^{214}Bi , también emisor beta con un periodo de 19.9 minutos. El siguiente elemento en la cadena de desintegración es el ^{214}Po , emisor alfa, con una vida media muy corta de 164 microsegundos (μs) y con una energía de 7.69 MeV. Este se desintegra en ^{210}Po , con una vida media de 22.3 años, y este a su vez, sufre una desintegración beta, convirtiéndose en ^{210}Pb , un elemento estable. La energía potencial alfa por átomo y por actividad para los descendientes del radón se muestra en la siguiente Tabla 2.3

Tabla 2.3. Energía potencial alfa por átomo y por actividad para los descendientes del gas radón (ICRP 137, Part 3, 2017).

Energía potencial alfa					
Nucleido	Vida media	Por átomo		Por actividad	
		MeV	10^{-2} J	$\text{MeV}\cdot\text{Bq}^{-1}$	10^{-10} J $\cdot\text{Bq}^{-1}$
Descendientes del radón (^{222}Rn)					
^{218}Po	3.05 min	13.69	2.19	$3.615\cdot 10^3$	5.79
^{214}Pb	26.8 min	7.69	1.23	$1.784\cdot 10^4$	28.6
^{214}Bi	19.9 min	7.69	1.23	$1.325\cdot 10^4$	21.2
^{214}Po	164 μs	7.69	1.23	$2\cdot 10^{-4}$	$3\cdot 10^{-6}$
Total en equilibrio, por Bq de ^{222}Rn				$3.471\cdot 10^4$	55.6

Las concentraciones de estos descendientes son generalmente menores que las del propio radón, dado que los descendientes pueden eliminarse por deposición en las superficies y por la ventilación de los espacios cerrados, reduciendo el tiempo del que dispone el radón para desintegrarse. Esto se cuantifica mediante el factor de equilibrio, F , que mide el grado de desequilibrio entre el gas radón y sus descendientes. Si la concentración de los descendientes de vida corta es igual a la concentración de ^{222}Rn (se alcanza el equilibrio), F será 1. No obstante, debido a la ventilación y deposición, F es inferior a 1. Generalmente, F es 0.4 para aire de interior y 0.2 para minas con ventilación forzada (ICRP 137, Part 3, 2017).

Tras el proceso de inhalación, la desintegración de los descendientes del radón tiene lugar en los pulmones antes de que pueda producirse la eliminación, bien por transporte de partículas al tracto alimentario o bien por absorción en la sangre, como se va a detallar en apartados posteriores. Como consecuencia, la dosis recibida en los pulmones contribuye con más del 95% de la dosis efectiva.

El comportamiento de los diferentes radionucleidos en el aire se caracteriza por el comportamiento de las partículas de los aerosoles en la atmósfera, dado que la cantidad inhalada y depositada en el tracto respiratorio depende de este tamaño de partículas (Mostafa et al., 2011). La distribución del tamaño de los aerosoles se basa en diferentes modos: modo libre (partículas < 1 nm), modo nucleación (partículas 10-100 nm), modo acumulación (partículas entre 10 y 1000 nm).

A continuación, en la Tabla 2.4 se presenta el porcentaje de deposición de los descendientes del radón inhalado en las regiones del tracto respiratorio.

Tabla 2.4. Deposición de aerosoles de los descendientes del radón inhalados en las diferentes regiones del tracto respiratorio (ICRP 137, Part 3, 2017).

Escenario	Modo	Deposición en las regiones del tracto respiratorio (%)					Total
		ET ₁	ET ₂	BB	bb	Al	
Todos	u	51.91	27.96	7.93	10.05	0.59	98.43
Interior trabajo	n	3.85	2.08	0.93	6.53	27.90	41.29
	a	10.68	5.75	0.60	1.42	9.05	27.51
Mina	a	3.16	1.70	0.41	2.16	9.95	17.37
Cueva turística	a	3.42	1.84	0.47	2.61	11.94	20.28

u, modo libre (*unattached mode*); n modo nucleación (*nucleation mode*); a, modo acumulación (*accumulation mode*).

ET₁, fosa nasal anterior (*anterior nasal passage*); ET₂, fosa nasal posterior, faringe y laringe (*posterior nasal passage, pharynx and larynx*); BB, bronquios (*bronchial*); bb, bronquiolo (*bronchiolar*); Al, alveolar-intersticial (*alveolar-interstitial*)

2.2.2. Fuentes de radón

El radón está presente de manera natural en suelos, en función de la composición y del tipo de roca; en materiales de construcción cuyas materias primas tienen cierto contenido en radio y uranio y, en menor medida, en agua, cuando el gas se disuelve en corrientes subterráneas, lagos, ríos, pozos, estanques, etc. A continuación, se describen de manera más detallada, las principales fuentes de radón.

▪ Suelos

Es la fuente principal de radón cuyas concentraciones se deben a las cantidades de radio y uranio presentes en los suelos. Así, por ejemplo, las rocas graníticas presentan una mayor concentración de uranio (5 ppm de ²³⁸U) que las rocas basálticas (5.0 ppm de ²³⁸U) o las arenas (0.5 ppm de ²³⁸U).

La emanación y exhalación del radón desde suelos depende de varios parámetros:

- Concentración de ²³⁸U, que determinará la actividad de radón en el suelo o en las rocas, tal y como se muestra en la Tabla 2.5.

Tabla 2.5. Concentración de uranio en diferentes tipos de rocas (Quindós, 1995)

Tipo de roca	Concentración de uranio ^{238}U (ppm)
Arenas	0.5
Basálticas	1.0
Arcillas	3.7
Granitos	5.0

- Permeabilidad del terreno, de la cual depende la capacidad del propio gas de escapar de entre los poros de las rocas y del suelo (poder de emanación).
- Contenido de humedad de la tierra, ya que el gas radón es también soluble en agua y podría quedarse retenido.
- Porosidad de suelos y rocas, ya que cuanto menor sea esta, más dificultad presenta el radón de traspasar (Frutos et al., INT 04.20 CSN 2010).

- **Materiales de construcción**

Son considerados como fuente de radón dado que algunos de los materiales de construcción presentan, de manera natural, cierto contenido de elementos radiactivos como radio (^{226}Ra), potasio (^{40}K), o torio (^{232}Th).

Sus concentraciones dependen también del propio contenido en radón, de la porosidad del material o del método de preparación de los materiales basados en residuos industriales (cenizas volantes) o materiales naturales (granito). Otros elementos utilizados en la construcción son la arena o grava, el yeso natural o el hormigón.

Se considera que un 20% del radón total medido en una habitación se debe a los materiales de construcción, con una contribución que oscila entre los 5 y los 20 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ (Frutos et al., INT 04.20 CSN 2010). Por esto se destaca la importancia de la caracterización radiológica de los materiales antes de su utilización.

- **Aguas**

El gas radón presente en aguas subterráneas se produce principalmente a partir del contenido de radio (^{226}Ra) en rocas, suelos y sedimentos y en menor medida, al disuelto en agua. El radón, tras su emanación y liberación de las rocas, se disuelve en el agua desde donde es transportado hasta lagos, acuíferos, manantiales, pozos, etc.

La exposición de radón en agua se debe a su inhalación una vez este se ha liberado al aire, contribuyendo así a un aumento de su concentración en

espacios poco o nada ventilados. Cualquier proceso de aireación y agitación de aguas que se lleva a cabo en balnearios, cuevas, plantas de tratamiento de aguas o incluso en actividades domésticas diarias (lavado de platos o duchas, apertura de grifos, etc.), pueden propiciar que el gas pase del agua al aire. Por este motivo, la propia ingesta de agua con contenido en radón supone un riesgo menor que su inhalación una vez en el aire.

Lavanderías o cocinas de restaurantes pueden tener elevados niveles de radón mientras que en aguas de suministro la concentración es baja debido a que proviene de embalses superficiales de captación de lluvia y no de aguas subterráneas. El riesgo se reduce generalmente a pozos ubicados en formaciones geológicas con elevado contenido en uranio (UNSCEAR Vol. II, 2006).

2.2.3. Unidades de medida

La unidad de medida utilizada para las concentraciones de radón en aire es el *Becquerel por metro cúbico* ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) mientras que, para los niveles de radón en agua, el *Becquerel por litro* ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$). La tasa de exhalación de radón, que determina la liberación de radón desde la superficie del suelo hasta la atmósfera, se mide en *Becquerel por metro cuadrado y hora* ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$). La unidad para la medida de la tasa de generación o emisión de una fuente de radón es el *Becquerel por metro cúbico y hora* ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{h}^{-1}$).

En ocasiones, y según UNSCEAR, las concentraciones de radón vienen determinadas por la concentración equivalente en equilibrio (*Equilibrium Equivalent Concentration, EEC*, en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$), definida como la concentración equivalente de los descendientes del radón en equilibrio según la expresión de la ecuación (2.16) (UNSCEAR Vol. II, 2006)

$$\text{EEC} ({}^{222}\text{Rn}) = 0.105({}^{218}\text{Po}) + 0.516({}^{214}\text{Pb}) + 0.105({}^{214}\text{Bi}), \quad (2.16)$$

donde ${}^{218}\text{Po}$, ${}^{214}\text{Pb}$ y ${}^{214}\text{Bi}$ son las concentraciones en aire de los descendientes ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$).

La exposición de los trabajadores se mide en *miliSievert* (mSv), según el Real Decreto 783/2001, del 6 de julio por el que se aprueba el Reglamento sobre Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes.

Asimismo, y de forma general en la industria minera, la exposición al radón se mide en unidades de *Working Level* (WL) o *Working Level Month* (WLM) si se trata de la exposición acumulada.

Se define una concentración de 1 WL como la combinación de descendientes que gas radón en 1 m³ de aire resultante de la emisión de 1.3·10⁸ MeV de energía alfa:

- 1 WL = 1.3·10⁸ MeV/m³ = 0.020826 mJ·m⁻³
- 1 WL = 3750 Bq·m⁻³ de concentración equivalente en equilibrio (EEC)

El WLM se define a su vez como la exposición a una atmósfera de 1 WL durante el periodo de trabajo de 1 mes (170 horas) (ICRP 137, Part 3, 2017):

- 1 WLM = 0.020826 mJ·m⁻³ * 170 horas = 3.54 mJ·h·m⁻³
- 1 WLM = 3750 Bq·m⁻³ * 170 horas = 6.37·10⁵ Bq·m⁻³·h de EEC

Estas unidades permiten evaluar los riesgos derivados de la exposición al radón en lugar de emplear unidades de mSv. La principal ventaja del uso de estas unidades es que se puede calcular directamente la exposición en WLM a partir de la energía alfa medida en el aire considerando las horas de trabajo realizado.

2.2.4. Radón en aire

Una vez liberado a la atmósfera después de haber sido transportado desde la fuente generadora, el radón tiende a acumularse en espacios cerrados con poca ventilación. Mientras que al aire libre su concentración media oscila del orden de los 10 Bq·m⁻³ (UNSCEAR Vol. I, 2000), en espacios cerrados tales como viviendas o lugares de trabajo se alcanzan más de 10000 Bq·m⁻³ (OMS, 2021) debido al flujo generado desde el suelo hasta el interior de las edificaciones. Dada su elevada movilidad, puede también viajar a través de los poros de las construcciones, atravesar forjados, muros, soleras o introducirse por las grietas. Cuanta mayor sea la acumulación dentro de los espacios cerrados, mayor es el riesgo asociado a la inhalación de este gas.

Prevenir los niveles de radón en aire, en viviendas, pasa por la mejora de la construcción a través de cámaras de sistemas de barreras anti-radón, impermeables al gas y en contacto con el terreno; sistemas de extracción o presurización, que permiten evacuar el gas a la atmósfera, la utilización de puertas estancas o el sellado de las grietas y juntas por las que se podría producir la inmisión del radón.

Sin embargo, y pese a la peligrosidad asociada a la inhalación de este gas, también es utilizado como trazador geofísico y herramienta para el análisis de la dinámica de los procesos atmosféricos y, para conocer la tasa de intercambio de aire en interior de minas y cuevas (Sainz et al., 2018).

Además de ser una herramienta para analizar diferentes procesos en las cuevas, el gas radón también ha permitido analizar los movimientos y las fallas tectónicas en zonas de alto interés geográfico. Analizando las concentraciones

de radón y torón, se han observado las anomalías y cambios en aquellas ubicaciones con actividad sísmica profunda, de entre 5 y 10 km. Sin embargo, la correlación es menos significativa entre la energía sísmica que se liberaba y los niveles de radón en el suelo. Se ha considerado que disponer de un mapeo de la distribución de los niveles de radón en el suelo podría evidenciar fallas ocultas. (Neri et al., 2011)

Se ha comprobado que también puede utilizarse para hallar fugas naturales de dióxido de carbono (CO₂), ya que se demostró que los niveles de radón aumentaban en los puntos cercanos a este escape (Elío et al., 2015).

A nivel nacional, la monitorización del gas radón y su aplicación como trazador atmosférico muestra los intercambios gaseosos que se producen en diferentes partes de una cueva dado que su comportamiento fisicoquímico es sencillo si se compara con otros trazadores como el CO₂. Además, permite analizar los ciclos estacionales de recarga y desgasificación y analizar también las fluctuaciones diarias existentes (Sainz-Fernández et al., 2018).

Se estima que la concentración promedio de radón en aire oscila entre 5 y 15 Bq·m⁻³, mientras que en espacios cerrados con poca o nula ventilación, los niveles alcanzan órdenes de magnitud de hasta 106 Bq·m⁻³. La OMS establece como valor recomendable, no superar los 100 Bq·m⁻³ según el índice de incremento de cáncer de pulmón conocido, mientras que el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) recomienda un nivel de referencia, en promedio anual de 300 Bq·m⁻³ de concentración de radón en aire.

A continuación, se muestran los órdenes de magnitud para la concentración de radón en aire en la Figura 2.6.

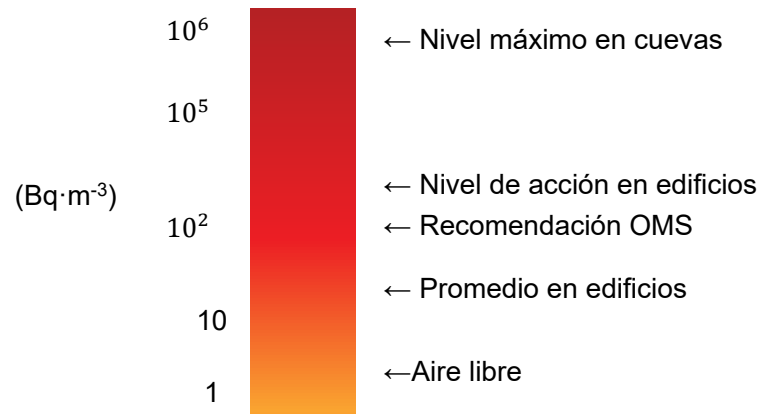


Figura 2.6. Orden de magnitud de los niveles de radón en aire (Web CSN).

2.2.5. Radón en agua

El radón es uno de los gases más densos ($9.73 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$) y, de entre los nobles, el más soluble en agua ($230\cdot 10^6 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ a $20 \text{ }^\circ\text{C}$ y 1 atm). Las moléculas de radón entran en contacto con el agua y se disuelven, según la Ley de Henry.

Por tanto, la cantidad de ^{222}Rn en el agua depende de la presión parcial a la que se encuentre el gas además de su capacidad de disolución en el medio acuoso, determinada por el coeficiente de Ostwald, que relaciona la concentración de radón en agua con la concentración de radón en aire según la ecuación (2.17)

$$\alpha = \frac{C_w}{C_a}, \quad (2.17)$$

siendo α el coeficiente de Ostwald (adimensional); C_w , la concentración de radón en agua ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ convertidos a $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) y C_a la concentración de radón en aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$).

El valor del coeficiente a 1 atm de presión, y para una temperatura de entre 0 y $40 \text{ }^\circ\text{C}$, puede definirse según la función de la ecuación (2.18)

$$\alpha = 0.425 \cdot e^{-0.05\cdot T} + 0.1, \quad (2.18)$$

donde T es el valor de la temperatura ($^\circ\text{C}$).

Dando valores de temperatura, se puede determinar el coeficiente α , cuya evolución frente a la temperatura se muestra en la Figura 2.7.

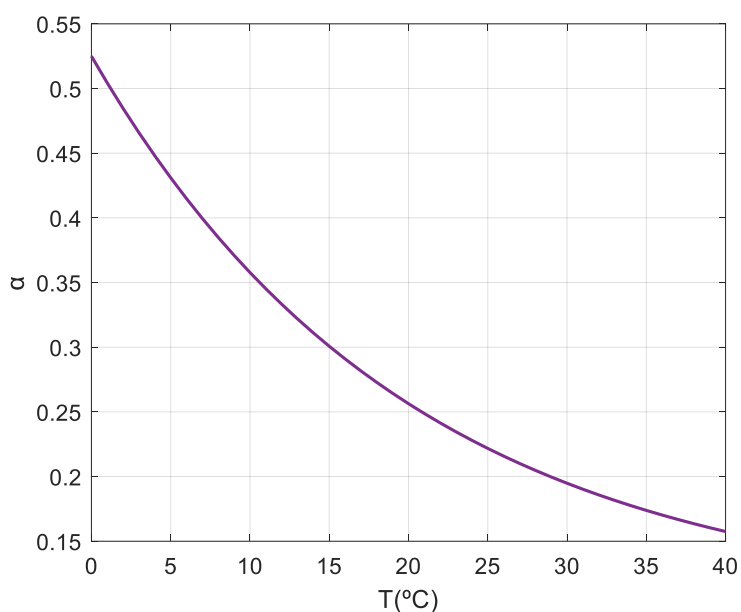


Figura 2.7. Representación del coeficiente de Ostwald para temperaturas de 0 a 40 °C.

Tal y como se observa en la figura anterior, cuanto mayor es la temperatura, menor es la solubilidad del ^{222}Rn en agua y, por tanto, menor es la concentración de radón en agua respecto a la del aire.

Cabe destacar que los niveles de radón en agua no presentan valores homogéneos, sino que el rango de concentraciones varía ampliamente según el nivel de uranio en los sólidos por los que se pueda ver afectada el agua. Así, los niveles en rocas cristalinas, debidos a la presencia de uranio, oscilan entre $1 \cdot 10^2$ y $5 \cdot 10^4$ $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ mientras que, en rocas sedimentarias o acuíferos, entre 1 y 50 $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$. Generalmente, las concentraciones de radón en agua se relacionan con niveles altos de uranio en sedimentos (Cosma et al., 2008).

Dado su corto periodo de semidesintegración, el radón no puede transportarse desde grandes profundidades por un sistema de difusión, pero sí puede ser transportado por un gas ascendente y burbujas o una columna de agua (Rábago, 2013). Si el radón se incorpora al agua en la última parte del proceso de transporte, antes de ser liberado a la atmósfera, puede ser utilizado como trazador. En ese caso, permite analizar el flujo y la velocidad del fluido en función de las concentraciones medidas.

Suelen hallarse niveles de radón en aguas subterráneas, lo que permite realizar un mapeo de las zonas y determinar cómo funciona el sistema hidrotermal, las posibles fallas volcánicas, así como la predicción de terremotos, gracias a un aumento de los niveles de Rn en agua, tiempo antes de que este fenómeno natural se produzca (Woith, 2015).

En España existe gran variedad de estudios e investigaciones que hacen referencia a los niveles de radón en agua. En ellos, se analizan las concentraciones en los procesos de descarga de aguas subterráneas (Moreno et al., 2014; Baudron et al., 2015), así como los niveles de radón u otros radionucleidos en spas (Soto et al., 1995; Ródenas et al., 2008), balnearios o plantas de tratamiento de aguas (Montañana et al., 2013).

Se ha observado, después de analizar el radón en agua y las concentraciones de radionucleidos presentes en los depósitos sedimentarios, que los mayores niveles de radón se obtuvieron en pozos profundos y en manantiales con flujos, ubicados cerca de zonas volcánicas, donde existen fallas del sustrato. Se considera que, al estar en contacto con los puntos fracturados, el radón emana y se disuelve en agua. Por tanto, existe un transporte de radón a través de las fisuras. Sin embargo, pese a no hallar concentraciones de ^{226}Ra altas en los materiales volcánicos ni que los niveles de radón en agua sean elevados, las viviendas ubicadas en esas zonas presentan valores en aire altos por lo que es imprescindible controlar la cantidad de radón en agua y minimizarla para evitar su posterior acumulación en interiores una vez liberado el gas (Moreno et al., 2014).

Siguiendo las directrices de la Directiva 51/2013/EURATOM, que considera a trabajadores de balnearios y spas como trabajadores expuestos debido a altos niveles de radón en aire, se ha evaluado también el riesgo de aguas de manantial a nivel nacional (Montañana et al., 2013). Asimismo, se ha observado que las concentraciones de radón en aire en un spa pueden variar desde valores de unidad hasta de unidades de millar (en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) considerándose el agua subterránea como fuente principal de aportación de ^{222}Rn . Estos niveles en el medio acuoso no superan los límites legislativos establecidos por lo que, de nuevo, se constata que, pese a tener niveles bajos de radón en agua, esta es una fuente importante de acumulación en aire debido al proceso de liberación agua-aire (Moreno et al., 2018; Sainz et al., 2016).

2.2.6. Procesos de liberación a la atmósfera

En este apartado se detallan los procesos que tienen lugar desde la fuente de generación de radón hasta su liberación al aire.

Liberación de radón desde suelos

Dado que el radón es un gas que emana de forma natural de suelos, rocas y materiales de construcción, este puede transportarse desde su fuente de origen hasta alcanzar el aire durante sus 3.82 días de vida media. Existe una baja probabilidad de liberación a la atmósfera de aquellos átomos de radón que se encuentran retenidos en los gránulos sólidos. Sin embargo, cuando el radón se encuentra en el espacio intersticial, intergranular, y consigue escapar del sólido del material, tiene lugar el proceso de emanación, que depende de la capacidad del gas de liberarse de la estructura de la roca (Frutos et al., INT 04.20 CSN 2010).

Una vez este fenómeno se ha iniciado, los átomos de radón son arrastrados a través del suelo mediante el proceso de difusión principalmente, y, en menor proporción, convección (advección) y se desplazan hacia la superficie del suelo a través del terreno. La liberación de radón desde la superficie terrestre hasta la atmósfera se denomina exhalación (UNSCEAR, Vol. I, 2000).

Los dos procesos de liberación del gas radón, emanación y exhalación, se muestran en la Figura 2.8.

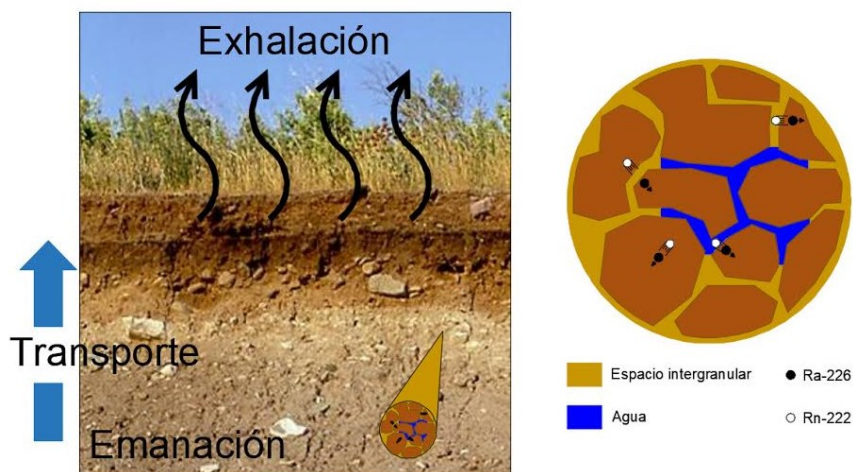


Figura 2.8. Proceso de liberación del radón (Noverques, 2017).

El proceso de emanación se caracteriza por cuantificar los átomos que escapan del grano del material como consecuencia de su retroceso durante la desintegración de radón. El rango de retroceso en sólidos es de 50 nm, pequeño, por lo que los átomos suelen permanecer en la red cristalina del mineral. Si el retroceso termina fuera del grano, el radón puede transportarse y migrar. Estas distancias de retroceso difieren para aire y agua respecto de otros materiales sólidos, de forma que la cantidad de átomos que escapan de cada medio varía. Generalmente, uno de los parámetros que define este proceso es el coeficiente de emanación, que indica la fracción de átomos de radón generados que escapan de la fase sólida en la que se forman y quedan libres para migrar a través del medio (IAEA, 2013).

La emanación de gas radón depende del tipo de roca, del tamaño de las partículas y del contenido de humedad, descritos en diversas investigaciones (IAEA, 2013; Sakoda et al., 2010). Destaca el efecto de la humedad en la emanación de gas radón dado que el agua es más efectiva en detener los átomos de radón dentro del espacio poroso. Esto se debe a que los rangos típicos de retroceso de los átomos en el agua son mucho menores que en el aire, 77 nm frente a $53 \cdot 10^3$ nm, (Ziegler et al., 1985). A nivel práctico, la emanación y su coeficiente deben medirse para los diferentes medios en los que se muestree.

Una vez emanado desde la fuente que lo genera, la cantidad de radón que se transporta a la superficie viene determinada por la tasa de emisión de radón (o tasa de producción).

Cuando el radón alcanza la superficie terrestre, una cantidad logra escapar al aire por unidad de tiempo y superficie, lo que es conocido como tasa de exhalación ($\text{Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3}$). Esta tasa varía en función de las características físicas del suelo, así como de las condiciones meteorológicas del emplazamiento y varía entre $1 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-2}$ y $100 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-2}$. Se estima que, en la Tierra, en valor promedio, la tasa de exhalación es de $50 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-2}$ (ISO 11665-7, 2016).

Una vez en el aire, los niveles de radón se definen mediante los conceptos concentración de radón en aire o actividad volumétrica, que es la actividad por unidad de volumen ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$).

Liberación de radón desde aguas

Los niveles de radón en agua se deben principalmente a la existencia de radio (^{226}Ra) ya disuelto en el agua, o son causados por un retroceso del átomo de radón generado en la desintegración del radio en el punto límite de la interfase sólido-líquido (Celaya, 2018).

Generalmente, el mecanismo de difusión es predominante en canales intergranulares y poros pequeños por los que circula el agua. El proceso de convección y arrastre predomina en poros de mayor tamaño.

Una vez incorporado el átomo de radón al agua, puede ser transportado desde las aguas subterráneas hasta ríos, lagos, estanques, etc. Su liberación al aire se ve favorecida por procesos de turbulencia y agitación en los cuales se produce inicialmente la desorción del radón disuelto en agua.

2.2.7. Transporte y movilidad

A continuación, se detallan los procesos que definen el movimiento del gas radón a través de suelos, materiales de construcción y agua, una vez liberado de los granos de la fuente generadora.

Movilidad a través de suelos y materiales

Los mecanismos que rigen el transporte del gas desde las rocas y suelos hasta su liberación al aire son:

- **Proceso de difusión:** viene dado por la diferencia de concentración entre el punto inicial de migración hasta el punto final, hasta su liberación. Por ejemplo, la diferencia de concentración que existe entre el poro de la roca desde donde emana hasta el interior del sótano de una vivienda. Se trata de un movimiento del gas en el interior del material que lo contiene. Este proceso viene determinado por el coeficiente de difusión D ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), que varía en función del medio en el que el gas se difunde, tal y como se muestra en las características fisicoquímicas de la Tabla 2.2. El movimiento por difusión se basa en la Ley de Fick, que determina que el flujo de gas radón varía desde las zonas con alta concentración hacia las zonas de baja según la ecuación (2.19)

$$E_{\text{exhalación}} = -D_M \cdot \nabla C_{\text{Rn}}, \quad (2.19)$$

siendo $E_{\text{exhalación}}$, flujo o tasa de exhalación del radón ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$); D_{MA} , coeficiente de difusión del radón en el medio en el que se difunde ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) y ∇C_{Rn} es el gradiente de concentración del gas radón en el espacio intersticial ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$). El signo negativo de la ecuación indica que la difusión se produce hacia zonas con menor concentración.

- **Procesos convectivos-advectivos:** afecta principalmente a la entrada de radón en viviendas y edificios. Viene dado por una diferencia de la presión que existe entre la fuente generadora de radón y la presión atmosférica o del interior de la vivienda. El flujo convectivo depende de la permeabilidad del medio, y el gradiente de presión siguiendo la Ley de Darcy.

Movilidad a través del agua

La movilidad del radón en el agua viene determinada también por procesos difusivos y convectivos. Sin embargo, y a pesar de poder caracterizar el transporte del radón mediante estos dos procesos, existen evidencias de otro posible modelo: transporte de radón por microburbujas geogásicas (Varhegyi et. al, 1992).

Mediante ensayos experimentales se observó que, en agua pura, la convección generada por el gradiente térmico y el transporte por microburbujas eran los procesos principales que regían el transporte de radón en el agua (Varhegyi et. al, 1992). Analizando también ambos fenómenos en un medio poroso saturado de agua, se concluyó que el transporte convectivo era prácticamente nulo dada la presencia de gránulos. Asimismo, en los diferentes ensayos, el transporte difusivo en agua se consideró despreciable ya que solo permite la movilidad de entre 5 y 10 metros de longitud (Tanner, 1964).

El modelo de transporte unidimensional debido a las microburbujas describe la distribución vertical de la concentración del radón despreciando las variaciones horizontales y temporales. En estado estacionario, la ecuación que rige el sistema se presenta en la ecuación (2.20)

$$D_M \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{\partial(v \cdot C)}{\partial z} - \lambda \cdot c + q = 0, \quad (2.20)$$

donde C es la concentración de radón ($\text{átomos} \cdot \text{m}^{-3}$); z la distancia vertical (m); D_M , la constante de difusión del radón en el medio en el que se difunde ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$); v , la velocidad en el medio ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$); λ , la constante de decaimiento del radón (s^{-1}) y q , la intensidad de producción de radón ($\text{átomos} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$). Los términos corresponden, de izquierda a derecha, a la difusión, al desplazamiento del radón en un medio en movimiento, decaimiento de radón y su producción, respectivamente.

Factores que intervienen en la movilidad del gas

De entre los diversos factores que pueden favorecer o impedir la movilidad del gas radón, destacan:

- **Permeabilidad de los suelos:** Este parámetro facilita el transporte de gas radón en suelos. Sin embargo, la presencia de agua causa una disminución en su permeabilidad ya que facilita el frenado de los átomos que escapan desde los granos de las rocas.
- **Estado de las rocas:** En función del grado de saturación de agua en los poros de las rocas y su grado de fracturación, el gas radón tendrá una mayor movilidad. Así, cuando haya una alta saturación, el gas quedará retenido en las moléculas de agua y su movilidad será baja. Sin embargo, si existe una elevada fracturación de las rocas, el gas podrá escapar fácilmente hasta alcanzar la superficie de aire libre.
- **Meteorología:** Cuando se producen lluvias sobre zonas con alto contenido en uranio y radio en el suelo, el agua actúa como barrera del radón impidiendo su liberación al aire libre: el radón se disuelve, lo que facilita su transporte por corrientes subterráneas, pero dificulta su exhalación. Sin embargo, en las zonas secas, debajo de viviendas y edificios, la concentración aumenta ya que el flujo de radón encuentra un camino preferencial, moviéndose desde el suelo mojado al suelo seco. La temperatura provoca cambios en el movimiento convectivo del aire que transporta al radón. Por las noches, y a causa de la estabilidad atmosférica, la concentración de radón en aire aumenta mientras que, por el día, y debido al calentamiento, los niveles de este gas son menores. El viento y la presión atmosférica también modifican el flujo convectivo de transporte del radón.
- **Topografía:** las viviendas ubicadas en los fondos de los valles presentan concentraciones de radón bajas a causa de un mal drenaje del terreno dada la existencia de materiales poco permeables. En las laderas, las concentraciones son mayores por el adecuado drenaje, así como por el efecto convectivo debido al gradiente de temperatura.

2.2.8. Dosis debidas al radón

Tal y como se ha comentado en el apartado Radiación, la dosis recibida debido a la exposición al radón es de 1.15 mSv por año, en valor promedio, en España. En algunas localizaciones, y debido a la casuística de la zona, la dosis puede alcanzar los 40 mSv por año.

Se considera que la concentración de radón en el interior de las viviendas, en valor promedio, es de 24 Bq·m⁻³, es decir, se desintegran 24 Bq por cada

metro cubico de aire (Dosis de radiación, CSN 2010). La dosis se recibe principalmente en el interior de viviendas y edificios, donde el radón tiende a acumularse. En el exterior, al aire libre, se dispersa con facilidad.

En la Directiva 2013/59/EURATOM se establece el requisito de vigilancia radiológica cuando los y las trabajadoras puedan estar expuestos al radón y sean susceptibles de recibir una dosis superior a los 6 mSv·año⁻¹. Esta equivale a una concentración en aire de 400 Bq·m⁻³ suponiendo un tiempo de permanencia y exposición de 2000 horas anuales. Según legislación vigente, los y las trabajadoras expuestas no podrán recibir más de 20 mSv·año⁻¹.

Asimismo, en la ICRP 137, Parte 3 (ICRP 137, 2017) se establecen tres distinciones para el cálculo de los coeficientes de dosis efectiva: ingestión de gas radón, inhalación de gas radón e inhalación de los descendientes del ²²²Rn.

- Ingestión. Se establece una dosis efectiva por ingesta de ²²²Rn de 6.9·10⁻¹⁰ Sv·Bq⁻¹.
- Inhalación. La dosis efectiva es de 4.4·10⁻¹⁰ Sv·Bq⁻¹.
- Descendientes de radón (²²²Rn). Los coeficientes de dosis efectiva se muestran en la siguiente Tabla 2.6, calculados según la distribución de los aerosoles para lugares de trabajo, minas, y cuevas turísticas.

Tabla 2.6. Coeficientes de dosis efectiva (en Sv·Bq⁻¹) para radón inhalado (ICRP 137, Part 3, 2017).

Escenario	Modo	Coeficiente de dosis efectiva (Sv·Bq ⁻¹)		
		²¹⁸ Po	²¹⁴ Pb	²¹⁴ Bi
Todos	u	1.1·10 ⁻⁸	6.1·10 ⁻⁸	-
Interior trabajo	n	3.8·10 ⁻⁹	1.8·10 ⁻⁸	1.5·10 ⁻⁸
	a	1.3·10 ⁻⁹	6.7·10 ⁻⁹	5.9·10 ⁻⁹
Mina	a	1.4·10 ⁻⁹	6.7·10 ⁻⁹	5.6·10 ⁻⁹
Cueva turística	a	1.6·10 ⁻⁹	7.9·10 ⁻⁹	6.6·10 ⁻⁹

u, modo libre (*unattached mode*); n modo nucleación (*nucleation mode*); a, modo acumulación (*accumulation mode*).

Distribución de aerosoles según clasificación ICRP 137, Parte 3, Anexo A.

2.2.9. Efectos sobre la salud

En 1986 la Organización Mundial de la Salud declaró al radón como elemento carcinógeno; en 1987 la Agencia de Protección Ambiental de EEUU y en 1988 por la Agencia Internacional de Investigación de Cáncer (*International Agency for Research on Cancer*, IARC), la peligrosidad de este gas reside principalmente en dos de sus descendientes: ^{218}Po y ^{214}Po . Ambos son elementos sólidos que pueden adherirse a los aerosoles y partículas presentes en el aire. Durante el proceso de inhalación, se fijan en el sistema respiratorio mientras, en su proceso de decaimiento, emiten partículas alfa, caracterizadas por un poder de penetración pequeño pero elevada cantidad de energía que ionizan la materia. El efecto sobre la salud de las personas a la exposición de partículas alfa depende de cómo se expone cada individuo. Estas partículas carecen de energía para penetrar la capa externa de la piel por lo que la exposición externa del cuerpo (o contaminación) no supone riesgo elevado. Sin embargo, una vez inhalados o ingeridos, pueden dañar el tejido vivo sensible. Pueden liberar una elevada energía, de entre 10-50 cGy en unas pocas células durante el proceso de ionización. En el ADN, este tipo de partículas puede causar grandes grupos de ionizaciones múltiples, en ADN cercano y en moléculas adyacentes, causando graves daños localizados (Chauhan et al., 2012). Esta irradiación de células y tejidos broncopulmonares y el daño directo e indirecto al ADN, puede generar cáncer de pulmón. Se han observado cambios mutagénicos en células humanas expuestas al gas radón (Lutze et al., 1992), y se ha demostrado que las células epiteliales de próstata benignas expuestas a una dosis única radiación alfa de 0.6 Gy presentaban alteraciones morfológicas (Li et al., 2007). Asimismo, se ha observado un aumento de aberraciones cromosómicas después de la exposición al gas radón y a sus descendientes en comparación con la exposición gamma en animales y estudios in vitro (Jostes, 1996).

A partir de 1980 se han ido realizado numerosos estudios que analizan la relación directa entre los niveles de radón en el interior de viviendas, lugares de trabajo, etc., y el cáncer de pulmón en la población (Zeeb et al., 2015). Dado que hacerlo de forma individual implica que los estudios son pequeños y que no se puede descartar o demostrar la existencia real entre ambas variables, investigadores europeos, norteamericanos y chinos, unificaron todos sus datos para, de forma centralizada, poder analizar los resultados (Lubin et al. 2004; Krewswki et al., 2005,2006; Darby et al., 2005,2006). Demostraron, en base a sus investigaciones, que un número elevado de casos de cáncer de pulmón provenían de la exposición al radón residencial de la población, confirmando investigaciones anteriores a mineros expuestos a elevadas concentraciones de radón en aire en las minas. Asimismo, consideraban que no era posible descartar el riesgo de sufrir cáncer de pulmón, aunque las concentraciones de radón en aire no superasen los $200 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ (Zeeb et al., 2015).

De estos análisis agrupados se observó el incremento de sufrir cáncer de pulmón por cada $100 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ de concentración de radón en aire en el interior. Estas investigaciones establecían diferencias entre sexo (varones-mujeres), edad cuando aparece la enfermedad, consumo de tabaco y niveles de radón, observando un 10% de aumento del riesgo por cada $100 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, a partir de las concentraciones medidas.

Algunos países como Alemania, Canadá, Estados Unidos o Francia han publicado estudios de casos de cáncer atribuidos a la exposición de radón en aire en interiores (Zeeb et al., 2015), cuyas tasas son más elevadas en personas fumadoras. Es decir, estas personas presentan un riesgo de padecer cáncer de pulmón debido al radón en el caso de ser fumadora. Los no fumadores que vivan en residencias con concentraciones de 0, 100 u $800 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ presentan un riesgo de 4.5, o 10 por mil respectivamente de fallecimiento por cáncer de pulmón. Para una persona fumadora, este riesgo asciende a 100, 120 y 220 para estos mismos niveles de radón en interior (0, 100 u $800 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$).

En España existen diversos estudios de caso y controles que analizan la posible relación entre la exposición al radón y el riesgo de sufrir cáncer de pulmón. En Cantabria, se realizó un estudio a partir de un análisis de 63 casos de personas con cáncer de pulmón, y para cada caso, 2 controles al azar, que se habían emparejado por edad y sexo. Analizando la concentración de radón en interiores y las costumbres de los individuos (fumadores o no fumadores), se concluyó que no se había podido determinar una relación entre los niveles de gas y el cáncer. Estos resultados se atribuían a las bajas concentraciones existentes en Cantabria (Llorca et al. 2007)).

Sin embargo, entre los estudios de caso, destacan los realizados en Galicia, cuya geología se caracteriza por valores de radón en suelo superiores a otros puntos del país. A partir de un estudio de 163 sujetos con cáncer de pulmón y un muestreo de 241 personas sin cáncer, entre 1992 y 1994, se observó que existía un efecto sinérgico entre el radón y una de las variables analizadas: el consumo de tabaco. Los resultados mostraban que, incluso a concentraciones por debajo del límite legislativo, estar expuesto a este gas aumentaba hasta 2.5 veces el riesgo de sufrir cáncer de pulmón (Barros et al., 2002). Años más tarde, otro estudio incluía a 349 personas caso, que padecían cáncer y 513 personas de control, y concluía que el riesgo existía incluso a bajas exposiciones y que, de nuevo, las personas fumadoras veían incrementada la posibilidad de padecer cáncer de pulmón (Barros et al., 2012).

Otro estudio de caso, también en Galicia, con 521 individuos: 192 casos y 329 controles, de los cuales 21% eran mujeres, determinó mayores ratios de incidencia para aquellos individuos que habían estado expuestos a concentraciones superiores a los $200 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ y, de nuevo, se concluía que una exposición al tabaco ambiental aumentaba también el riesgo de sufrir cáncer de pulmón para estos niveles de radón en aire (Torres et al., 2014).

Dados los niveles de radón en esta comunidad autónoma, se realizaron otras investigaciones entre las que destaca también un estudio oncológico en 192 municipios, con una concentración media de radón en viviendas de $75 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. A partir del número de muertes por cáncer de pulmón, separado por sexos, se concluyó que existía una correlación entre ambas variables, y que esta era estadísticamente significativa para los hombres ($p=0.023$) pero no para las mujeres ($p=0.087$) (Barbosa et al., 2015).

Todas estas investigaciones demuestran la importancia de la prevención frente al radón en interiores, así como la relación existente entre la exposición al gas y el riesgo de sufrir cáncer de pulmón, incrementado además por el consumo de tabaco. De forma generalizada, se observa una mayor incidencia en aquellas ubicaciones en las que los niveles de radón son mayores.

2.2.10. Vías de entrada al cuerpo humano y modelo biocinético

Tal y como se ha comentado en apartados previos, las vías principales de entrada del radón al cuerpo humano son: inhalación e ingestión (ICRP 137, Part 3, 2017).

Pese a que el gas radón es un elemento químicamente inerte, una parte del inhalado es absorbido por el torrente sanguíneo desde los pulmones, desplazándose rápidamente en el interior del organismo. Absorbido en la sangre pulmonar, es distribuido a través de la sangre arterial a los tejidos para, posteriormente, transferirse a la sangre venosa. Finalmente, vuelve a la sangre pulmonar desde la venosa donde una parte del gas es exhalado, y el resto vuelve a la sangre arterial para continuar el ciclo.

Este ciclo, se define (de forma actualizada) en un modelo biocinético (*Biokinetic model for systemic radon*) en la, ICRP 137 y se utiliza para calcular la dosis por inhalación de gas radón. La tasa de transferencia entre la sangre y los diferentes tejidos del cuerpo humano depende de la tasa del flujo sanguíneo, de los diferentes volúmenes tisulares y sanguíneos, así como de la solubilidad relativa del radón en sangre y en tejidos, que se representa por los coeficientes de partición tejido-sangre. Todas las constantes de velocidad de transferencia (del aire a la sangre, de la sangre a los tejidos, etc.) vienen recogidas también en la ICRP 137.

Las concentraciones de equilibrio tanto en tejidos, en sangre y en el aire pulmonar se obtienen para una exposición continua a una concentración determinada de radón. El tiempo que tarda el ^{222}Rn en alcanzar estas concentraciones de equilibrio varía de días a minutos, según el suministro de sangre y del coeficiente de partición (Leggett et al., 2013).

En cuanto a la ingestión, dado que el radón es soluble en agua, si existen elevadas concentraciones en aguas potables de consumo humano, esta puede ser una vía importante de entrada al cuerpo humano. Diferentes ensayos experimentales han mostrado que el radón se puede absorberse fácilmente del tracto alimentario a la sangre, pero sin embargo no se ha podido establecer con seguridad el lugar de absorción exacto: estomago o intestino delgado. Diversos investigadores han considerado que se absorbe en la misma proporción en ambos lugares (ICRP 137, Part 3, 2017). Existen diferencias y discrepancias en la investigación sobre el tiempo de residencia del radón ingerido en el cuerpo humano y sobre el grado de difusión a través de las paredes del estómago, por lo que las estimaciones de dosis disponibles actualmente varían en dos órdenes de magnitud.

De entre las investigaciones sobre la ingesta de gas radón y el tiempo de retención en el cuerpo humano, destaca la realizada por Hursh et al. (1965), que utilizó medidas periódicas de la respiración de diferentes sujetos después de realizar comidas ligeras o pesadas (comidas pesadas o ligeras). En tres de los 4 ensayos llevados a cabo, el radón se ingirió 2 horas después de un desayuno ligero y en el cuarto, 10 minutos después de un desayuno abundante. La retención fue mayor en el último ensayo, posiblemente causado por un mayor tiempo de retención en el estómago lleno. La retención en los tres primeros ensayos (estómagos vacíos o pocos llenos) se correspondía con la suma de tres términos exponenciales: 11 minutos (61%), 19 minutos (34%) y 3 horas (5%). Sin embargo, con el estómago lleno, la retención variaba a 12 minutos (39%), 58 minutos (51%) y 5 horas (10%). Se concluyó que gran parte de radón ingerido puede mezclarse con el contenido estomacal, difundirse desde la pared del estómago hasta el sistema sanguíneo, pasar a través de hígado, o llegar hasta el corazón y de ahí, hacia los pulmones. Ahí, gran parte de la cantidad absorbida se pierde debido al aire expirado.

En investigaciones posteriores (Brown and Hess, 1992), se realizaron 41 pruebas en 38 sujetos de edades entre 9 y 85 años, con actividades físicas muy variadas, para analizar la tasa de eliminación del gas radón en aliento expirado después de una ingesta elevada de radón en agua potable. El porcentaje de eliminación del gas en el cuerpo humano durante los 30 primeros minutos variaba entre el 12% y el 68%. Se validaba una correlación moderada con el tiempo transcurrido después de la ingesta. Los tiempos de retención estimados variaban entre 17 y 400 minutos.

Asimismo, se ha estimado que la pérdida de gas radón a través de la piel, de orina o de heces es pequeña en comparación con la exhalación (Hursh et al, 1965).

La distribución, retención y excreción del gas radón, y de otros gases nobles, se ha llevado a cabo mediante modelos compartimentales biocinéticos.

A continuación, en la

Figura 2.9 se muestra la estructura del modelo biocinético del gas radón, incluye el proceso de inhalación y exhalación a través del tracto respiratorio y explica cómo el gas radón va transfiriéndose en mayor o menor medida desde los distintos órganos a través de la sangre arterial y venosa. En cada caso, se ha incluido el coeficiente de transferencia en unidades de d^{-1} .

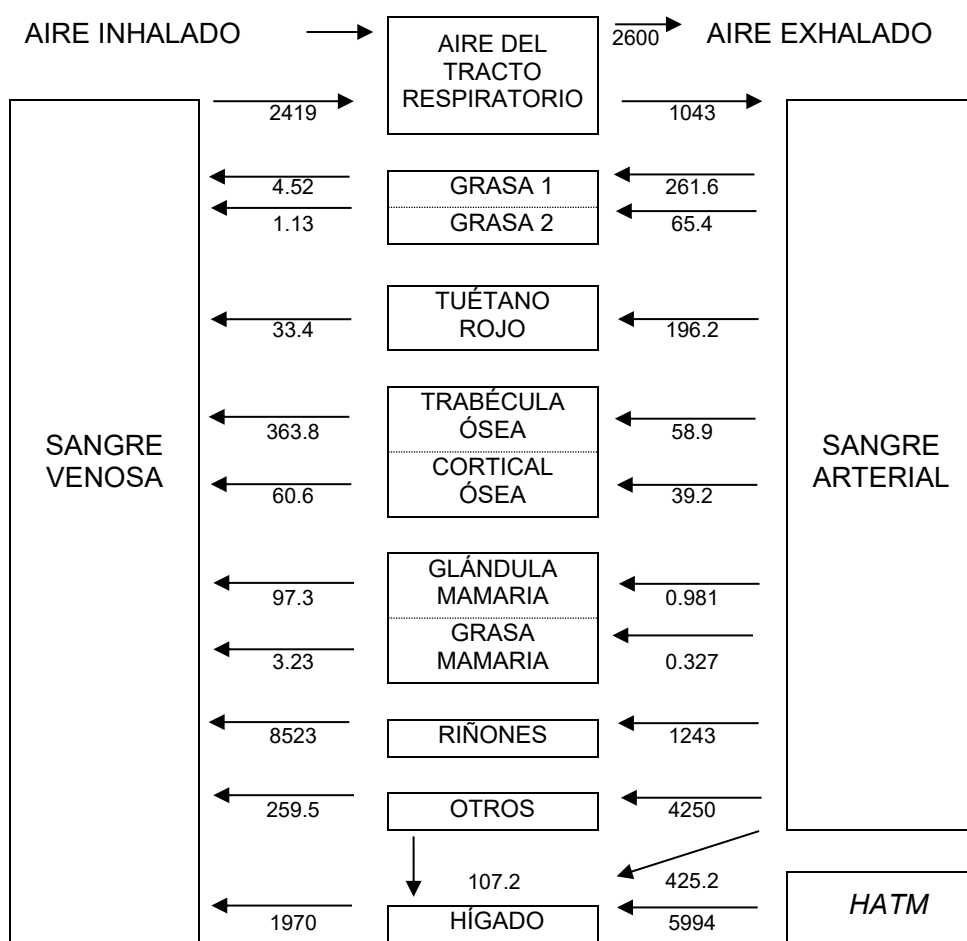


Figura 2.9. Estructura del modelo biocinético para el gas radón. HATM, Human Alimentary Tract Model (Modificado de ICRP, 2006)

2.2.11. Mapa potencial de radón

En España, el Consejo de Seguridad Nuclear ha desarrollado el mapa potencial de radón. Se trata de una cartografía que clasifica todo el territorio según los valores de concentración de este gas. Se identifican las zonas en las que existe un significativo porcentaje de viviendas con concentraciones superiores a los $300 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ que es el valor fijado como máximo aceptable para los niveles en aire (Directiva 2013/59/EURATOM).

El mapa se basa en la relación existente entre el nivel medido de concentración de radón en más de 12000 viviendas y la tasa de exposición a la radiación gamma (Mapa Marna) en cada localización (Suárez et al., 2000) De forma indirecta, por tanto, está relacionado con la concentración de uranio y radio en el suelo. Se establecen zonas con niveles de radón homogéneos que se basan en el percentil 90 (P90) de la distribución de concentraciones de este gas al 90% de confianza como cota superior. Es decir, el 90% de las viviendas y edificios de esa zona tendrán concentraciones inferiores al rango de concentración dado, pero el 10% lo superará. Para $300 \text{ Bq}/\text{m}^3$ significa que el 90% de los edificios de la zona presentan concentraciones inferiores pero el 10% tiene niveles superiores a este nivel de referencia (García-Talavera et al., 2019). En la Figura 2.10 se muestra el mapa potencial del radón.

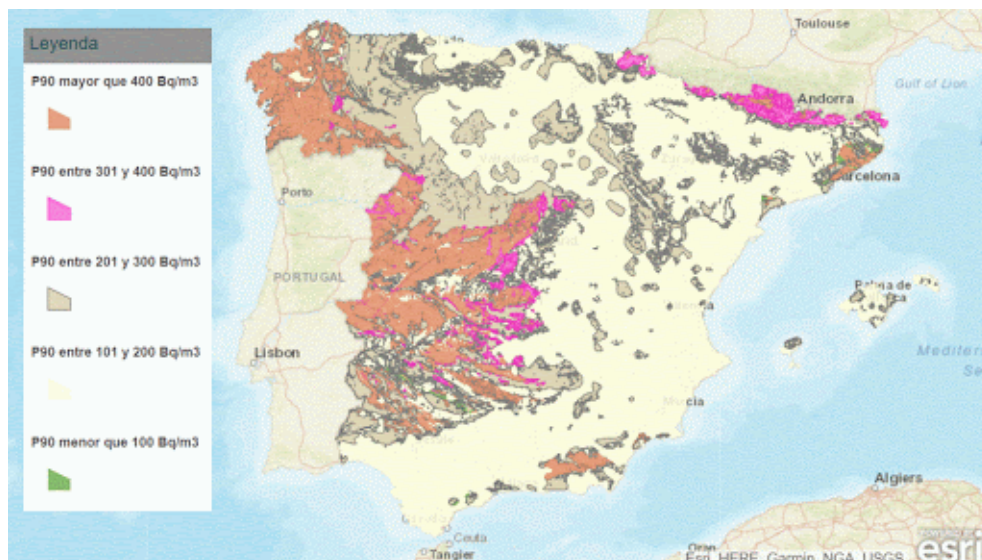


Figura 2.10. Mapa potencial de radón en España (Web CSN).

Estudio del comportamiento del gas radón en los procesos de transferencia en agua y en aire

Como se observa en la figura anterior, existen hasta 5 tramos de clasificación de los niveles de radón: P90 > 400 Bq·m⁻³; P90 entre 301 y 400 Bq·m⁻³; P90 entre 201 y 300 Bq·m⁻³, P90 entre 101 y 200 Bq·m⁻³ y P90 <100 Bq·m⁻³. Este mapa potencial depende principalmente del terreno y su capacidad para generar y transportar el gas, así como de las características de la edificación. Por esto, las zonas con suelos con alto contenido en uranio y radio como los graníticos, presentan niveles de radón superiores.

Otro de los mapas llevados a cabo por el Consejo de Seguridad Nuclear es el mapa de zonificación por municipios, que determina aquellos casos en los que la población en zonas de actuación consideradas como prioritaria representa más del 75% del total. Este mapa se muestra en Figura 2.11.



Figura 2.11. Mapa de zonificación por municipio de radón (Web CSN).

2.3. Marco legislativo

En este apartado se detalla toda la legislación vigente sobre la protección contra las radiaciones ionizantes, radón en aire y radón en agua. Se presentan también otras normativas y documentación relativa a los niveles de radón y la protección de la población utilizados como guías de referencia tanto para profesionales en el sector de la Protección Radiológica como usuarios.

2.3.1. Reglamento de Protección Sanitaria contra las Radiaciones Ionizantes

De entre las diferentes normativas y reglamentos, existe a nivel nacional el Reglamento de Protección Sanitaria contra las Radiaciones Ionizantes (RPRSI) (Real Decreto 783/2001) que establece las normas de protección de miembros del público y de trabajadores de los riesgos asociados a la exposición a las radiaciones ionizantes y fija los valores límite de dosis que pueden recibir.

En él, se detallan las autoridades y organismos competentes, los principios de justificación, optimización y limitación de dosis, cómo prevenir de la exposición (establecimiento y clasificación de zonas, clasificación de los trabajadores expuestos, etc.), así como los procesos de evaluación de la exposición y la vigilancia de los trabajadores, estudiantes y personas en formación.

Es, por tanto, el reglamento que regula cualquier tipo de radiación ionizante en España y que sirve de base y precedente para su control y protección

2.3.2. Legislación referente a los niveles de radón en aire

En 2001 se publicó en España el Real Decreto 283/2001, de 6 de julio, que aprobaba el Reglamento de Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes (RPSRI) trasponiendo así la Directiva 96/29/EURATOM. Esta Directiva establecía normas básicas referentes a la protección de trabajadores y de la población frente a los riesgos derivados de las radiaciones ionizantes. Se incluía un apartado (Título VII) sobre la importancia de controlar las fuentes naturales de exposición, pero únicamente en los lugares de trabajo y no en las viviendas.

Pese a la transposición a nivel nacional, en este Real Decreto 283/2001, se encomendaba la tarea de controlar el cumplimiento de las normativas a una autoridad competente, que, en ese momento, no estaba definida. Por ello, en 2010 se modificó el RD mediante la publicación del Real Decreto 1439/2010, incluyendo las consideraciones necesarias para la aplicación y ejecución de la normativa.

No obstante, no fue hasta 2012, cuando se publicó la Instrucción Técnica IS-33 del Consejo de Seguridad Nuclear que complementaba al Real Decreto sobre los criterios radiológicos a seguir ante la exposición a la radiación natural, y en el que se establecieron niveles de referencia del radón en aire. Se definían cuándo era necesaria la adopción de medidas correctoras en los lugares de trabajo.

Dos años más tarde, en 2014, la Unión Europea publicaba la Directiva 2013/59/EURATOM, que incluía la obligación de los estados miembros de la UE de proteger también a la población, de la exposición al radón. Asimismo, rebajaba el nivel de referencia de radón en aire a los $300 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ y requería planes de acción nacionales frente a este gas. La transposición debía llevarse a cabo antes del 6 de febrero de 2018.

A fecha de finalización de esta tesis doctoral, únicamente existe un Proyecto de Real Decreto sobre la protección frente a las radiaciones ionizantes. Sin embargo, sí se ha publicado el Real Decreto 732/2019 de 20 de diciembre, aprobando modificaciones del Código Técnico de la Edificación. En un nuevo apartado de salubridad, DB HS6, se incluyen las especificaciones y requisitos necesarios para el control y prevención de radón en aire.

La siguiente Tabla 2.7 recoge un resumen de las diferentes normativas e instrucciones y los niveles de referencia que se establecen en cada caso para las concentraciones de radón en aire.

Tabla 2.7. Resumen de los niveles de referencia de radón en aire

Año	Fuente	Nivel de referencia de radón en aire
2012	Instrucción IS-33 del Consejo de Seguridad Nuclear	$300 - 600 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$
2013	Directiva 2013/59/EURATOM	$300 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$
2015	Manual de la OMS sobre el radón en interiores	$100 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ * No superar los $300 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$
2020	Código Técnico de la Edificación CTE, DB HS 6	$300 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$

A continuación, se detallan las diferentes normativas relacionadas con los niveles de radón en aire y su protección.

Real Decreto 783/2001 y posterior modificación

Este Real Decreto supuso la transposición de la Directiva 96/29/EURATOM a la legislación española, en la que se establecían criterios de protección frente a la exposición de las radiaciones ionizantes. Incluyendo el radón como fuente de exposición, el reglamento no aplica a la exposición al radón en las viviendas, sino a actividades laborales en las que los trabajadores y/o miembros del público estén expuestos a descendientes del radón.

Se fijaban valores de dosis efectiva tanto para trabajadores expuestos como para personas en formación y público en general. Para los descendientes del radón en particular, indicaba los factores de conversión que deben aplicarse para el cálculo de la dosis efectiva por unidad de exposición de energía alfa: 1.1 para radón en vivienda y 1.4 para radón en el trabajo.

En este RD se establecía que la autoridad competente debía requerir su cumplimiento, pero, sin embargo, no se pudo definir quién era esta. Así, se disponía de un RD que incluía la reglamentación acerca de la protección contra radiaciones ionizantes pero que no se aplicaba por falta de potestad jurídica. Frente a esto, en 2010, se publicó el Real Decreto 1439/2010, de 5 de noviembre, por el que se modificaba el Reglamento sobre protección sanitaria contra radiaciones ionizantes (RD 783/2001, de 6 de julio).

Entre las modificaciones que se llevaron a cabo destaca que este nuevo RD no aplica a los casos de niveles naturales de radiación (rayos cósmicos, radionucleidos presentes en el cuerpo humano de forma natural, etc.) ni a la exposición radón en las viviendas. Sin embargo, sí aplica a aquellas actividades en las que tanto trabajadores como público puedan estar expuestos a la inhalación de radón y descendientes (cuevas, minas, establecimientos termales, etc.). En caso de que esto se produzca, las actividades deben ser declaradas según las instrucciones del Consejo de Seguridad Nuclear y los estudios que se realicen deben contener información acerca del tipo de instalación, las medidas del gas que se hayan realizado y los resultados, especificando también los puestos de trabajo y los tiempos de permanencia. Además, se debe incluir las medidas correctoras que se van a adoptar.

Dado que esta modificación del Real Decreto no incluye los niveles de referencia del radón en aire, el Consejo de Seguridad Nuclear publicó en el BOE nº 22, con fecha 26 de enero de 2012, la Instrucción IS-33, que se explica a continuación.

Instrucción IS-33 del Consejo de Seguridad Nuclear

Instrucción IS-33, de 21 de diciembre de 2011, del Consejo de Seguridad Nuclear sobre criterios radiológicos para la protección frente a la exposición a la radiación natural establece, entre otros, los criterios radiológicos sobre valores de dosis efectiva a los trabajadores y concentraciones de radón en lugares de trabajo.

Esta instrucción, centrada en control y vigilancia del radón en los lugares de trabajo, establece $600 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ como nivel de referencia del promedio anual de la concentración de radón en aire. Por encima de este valor de concentración, deben aplicarse las medidas correspondientes de protección radiológica de los individuos.

Si se trata de lugares de trabajo como hospitales, centros penitenciarios o centros educativos, en cuyo interior permanece más tiempo el público en general que los propios trabajadores, el nivel de intervención es de $300 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ de concentración promedio anual de radón. Los niveles de intervención propuestos en esta IS-33 son:

- $> 1000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$: aplicación de nivel alto de control
- Entre 600 y $1000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$: aplicación de nivel bajo de control
- $< 600 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$: no es necesario el control
- Para los trabajadores se aplican los límites de dosis establecidos en el Reglamento sobre protección sanitaria contra radiaciones ionizantes.

En cambio, para actividades en las que la exposición a los trabajadores no suponga un riesgo y no se superen los $600 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, el titular debe realizar una re-evaluación de la exposición cada 5 años para garantizar que no se supera este límite de concentración media anual. Asimismo, el titular también es responsable de controlar los niveles de exposición ocupacional de radón cuando exista almacenamiento o manipulación de materiales y residuos que generalmente no son considerados como radiactivos pero que contengan radionucleidos naturales superando así los $600 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$.

Directiva 2013/59/EURATOM

En 2013 la Unión Europea publicó la Directiva 2013/59/EURATOM del Consejo de 5 de diciembre de 2013, que establece las normas básicas para la protección contra los peligros derivados de la exposición a radiaciones ionizantes, derogando así las directivas anteriores.

Según el Artículo 1: Objeto, el objetivo de esta normativa es establecer una serie de normas básicas de seguridad uniformes aplicables a la protección de la salud de las personas sometidas a exposición ocupacional, médica y poblacional frente a los riesgos derivados de las radiaciones ionizantes que

apliquen a la protección de la salud de todas las personas que puedan estar expuestas a nivel médico, ocupacional y poblacional. En base a ello, esta Directiva se aplicará a situaciones de exposiciones planificadas, existentes o de emergencia que supongan un riesgo de exposición a las radiaciones ionizantes, así como a cualquier proceso o actividad humana que implique riesgo u ocasione un aumento de la exposición. Establece niveles de referencia para la exposición ocupacional como, por ejemplo, el límite de dosis efectiva de 20 mSv/año para un trabajador y las dosis equivalentes máximas (para cristalino, piel y extremidades) o el 1 mSv/año para la exposición poblacional. Fija también límite de dosis para aprendices, estudiantes, y trabajadoras embarazadas o en periodo de lactancia.

En particular, y dado que el objeto de estudio de esta tesis es el gas radón, esta directiva se aplicará cuando exista riesgo de exposición de trabajadores o población al radón en los recintos cerrados.

En el **Artículo 54: Radón en lugares de trabajo**, la Directiva constata la obligatoriedad por parte de los Estados miembros de la UE de establecer planes nacionales de referencia para las concentraciones de radón en aire en los espacios cerrados de los lugares de trabajo. Fija como nivel de referencia para el promedio anual de la concentración de radón en aire los 300 Bq·m⁻³. Asimismo, traslada la competencia de los Estados para exigir las mediciones que se han de llevar a cabo considerando los lugares de trabajo que se sitúen dentro de las zonas identificadas según el plan de acción nacional, y que sean sótanos o plantas bajas. Deben tenerse en cuenta también lugares de trabajo con características específicas, incluidos en ese mismo plan de acción.

Otro de los puntos clave de esta directiva es el **Artículo 74: Exposición al radón en recintos cerrados**, donde se establece de nuevo la importancia de disponer de niveles de referencia de radón en aire no superiores a 300 Bq·m⁻³ en cualquier tipo de recinto cerrado. Siguiendo el plan nacional de acción frente al radón, cada estado debe fomentar medidas que permitan identificar las viviendas donde la concentración de radón en aire, en promedio anual, supere ese nivel fijado. Si en algún caso se superase, deben promoverse medidas que permitan disminuir esa concentración. Por último, el artículo 74 incluye la importancia de informar a la población, tanto a nivel local como nacional, de los riesgos derivados de la exposición al radón y de la relevancia de realizar las medidas adecuadas para reducir concentraciones.

Todas las estrategias seguidas, los programas de medida, requisitos mínimos, etc., deben estar incluidos en el plan de acción a nivel nacional para el radón que según el **Artículo 103: Plan de acción para el radón**, desarrolla cada estado miembro de la UE basándose en las directrices dadas en la Directiva 2013/59/EURATOM. Deben garantizar que se adopten las medidas necesarias para el control del radón en aire en lugares de trabajo, edificios públicos y viviendas para cualquier vía de entrada del radón: suelo, agua o

materiales de construcción. En este artículo se incluye, por primera vez, la obligatoriedad por parte de los estados miembros de control y cumplimiento de las medidas para evitar la inmisión del radón en edificios de nueva construcción y la posibilidad de incluir todos los requisitos en el código técnico de la edificación.

Para la definición de los criterios de la elaboración del plan de acción nacional, esta directiva cuenta también con el **Anexo XVIII: Lista de aspectos que deberán considerarse para la preparación del plan de acción nacional destinado a hacer frente a los riesgos a largo plazo derivados de las exposiciones al radón que establece los requisitos mínimos que ha de contener.**

Consta de 14 puntos con las partes clave que cada Estado debe incluir en su plan nacional como las estrategias para realizar estudios de concentraciones, para reducir la exposición al radón en viviendas y facilitar la ejecución de medidas correctoras, así como disponer de programaciones para revisar periódicamente los planes, y establecer objetivos que permitan reducir el riesgo de cáncer de pulmón asociado al radón.

Las disposiciones detalladas en la Directiva 2013/59/EURATOM, deben ser traspuestas a las legislaciones de cada estado miembro de la UE antes del 6 de febrero de 2018 (**Artículo 106: Transposición**). En España, y a fecha de ejecución de esta tesis, se encuentra en formato de Proyecto de Real Decreto. No obstante, y siguiendo con esta Directiva, el Código Técnico de la Edificación ha incorporado las directrices a partir de la publicación del Real Decreto 732/2019 de 20 de diciembre.

Código Técnico de la Edificación

Con la modificación del Real Decreto 314/2006, ya obsoleto, se ha actualizado el Documento Básico BD HE de Ahorro de Energía, y el DB HS de "Salubridad", donde se especifican las nuevas exigencias que deben cumplir los edificios de nueva construcción.

Dado que la Directiva 2013/59/EURATOM obligaba a los estados miembros a establecer los planes de acción nacionales ya mencionados y a la adopción de las medidas necesarias para evitar la inmisión del radón en los edificios; a través del Real Decreto 732/2019, se incluye la exigencia de salubridad **HS6: Protección frente al gas radón**. Los edificios, viviendas y lugares de trabajo de términos municipales con riesgo de exposición al radón no despreciable, deben disponer de todos los medios adecuados para limitar el riesgo de exposición al gas procedente del terreno, en su interior.

Este documento explica el proceso de inmisión del radón en los edificios, los factores que podrían influir en ello (terreno, climatología, características constructivas del edificio y comportamiento del usuario). Establece pautas

generales para la determinación del promedio anual de las concentraciones de radón en aire, qué tipo de detectores se utilizan, la duración de las medidas, dónde y cómo ubicarlos, qué densidad de detectores se necesitan en cada caso, etc. Asimismo, propone las soluciones e intervenciones habituales para la limitación del radón en aire y una guía con los criterios de selección para decidir qué elegir en cada caso.

La nueva sección de salubridad, DB HS6, aplica para los edificios de nueva construcción que se ubiquen en las zonas clasificadas (zona 1 y 2) por el Consejo de Seguridad Nuclear como zonas de riesgo de exposición al radón. También aplica para aquellos edificios ya existentes en los que una reforma pueda afectar a elementos constructivos que pudiesen influir en los niveles de concentraciones de radón en aire, en ampliaciones de las edificaciones y posibles cambios de usos de estas.

En función de la zona en la que se ubique el edificio, las soluciones varían según las necesidades de limitación de radón. Tal y como se muestra en la Figura 2.12, en términos municipales ubicados en zona 1 ($C_{Rn} < 600 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$), pueden incluirse barreras de protección del terreno (A) en las cuales se utilizan materiales impermeables al radón que no permiten su inmisión en la vivienda o cámaras de aire ventiladas (B), sobre las que se asienta la vivienda. En este caso, la cámara de aire o espacio de contención se sitúa entre el terreno y el edificio a proteger que mediante ventilación mecánica o natural expulsa a el gas radón al exterior. En edificios de la zona 2 ($C_{Rn} > 600 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$), se han de incluir barreras de protección de forma obligatoria y, o bien cámaras de aire ventiladas (B) o una despresurización del terreno (C), que consiste en producir una depresión en el suelo subyacente o cercano a la vivienda o edificio favoreciendo la expulsión del radón al exterior. Para ello se utilizan sistemas de captación bajo solera o en los muros de los sótanos que se conectan a un conducto de extracción que comunica en el exterior permitiendo la evacuación del gas.

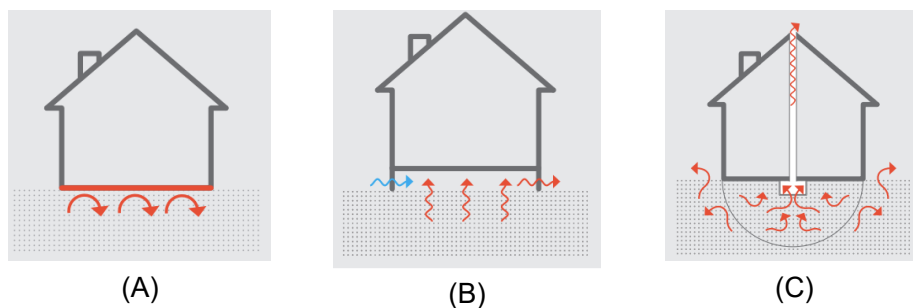


Figura 2.12. Soluciones para limitación del radón en edificios de nueva (CTE, DB HS6).

Para las intervenciones en edificios ya construidos, pueden además de las soluciones para obra nueva, incluirse también, como se muestra en la Figura 2.13, el sellado de los cerramientos en contacto con el terreno (D) y la mejora de la ventilación (E).



Figura 2.13. Soluciones para la limitación del radón en edificios existentes (CTE, DB HS6).

El sellado (D) limita la inmisión del radón que proviene del suelo hacia el interior de la vivienda o edificio a través del cerramiento. Se aísla el terreno evitando que el gas fluya por convección en los puntos como grietas, fisuras, juntas de dilatación etc. Además, una adecuada ventilación (E) reduce la concentración de radón en el interior, pero su efectividad se vería afectada si las viviendas o estancias están conectadas con otras no habitables como garajes o sótanos.

Las diferentes soluciones planteadas pueden ser combinadas entre sí para mejorar la calidad del aire en interiores con respecto a los niveles de gas radón: barrera frente al radón + despresurización; sellado + ventilación de la cámara; sellado + despresurización, etc.

2.3.3. Legislación referente a los niveles de radón en agua

En este apartado se detalla la normativa vigente respecto al control de radón en aguas de consumo humano.

En 2013 la Unión Europea presentó la Directiva 2013/51/EURATOM que incluía los requerimientos que los estados miembros debían llevar a cabo para el muestreo y análisis de las aguas para la protección frente a sustancias radiactivas, en particular, al radón. El valor paramétrico debía ser fijado por cada país, pero debía situarse entre los 100 y los 1000 Bq·L⁻¹.

En 2015 se publicó el Real Decreto 314/2016, una transposición de la Directiva en la que se establecían los 500 Bq·L⁻¹ como valor paramétrico de radón en aguas de consumo humano. Se fijaba también la frecuencia de

muestreo, así como el límite de detección para el método de análisis seleccionado.

En la

Tabla 2.8 se presenta un resumen de los niveles de referencia establecidos para las aguas de consumo humano.

Tabla 2.8. Resumen de los valores paramétricos de radón en agua

Año publicación	Fuente	Nivel paramétrico de radón en agua
2015	Directiva 2013/51/EURATOM	100 - 1000 Bq·L ⁻¹
2016	Real Decreto 314/2016	500 Bq·L ⁻¹

A continuación, se detallan las normativas referentes al control de los niveles de radón en agua.

Directiva 2013/51/EURATOM

La Directiva 2013/51/EURATOM establece los requisitos para la protección sanitaria de la población con respecto a las sustancias radiactivas en las aguas destinadas al consumo humano (**Artículo 1: Objeto**).

Se considera que las aguas de consumo humano son aquellas que se utilicen (en estado original o después de tratamiento) para cocinar y preparar alimentos, para beber o para cualquier otro uso doméstico, así como las aguas que se utilizan en la industria alimentaria.

Esta Directiva dicta que deben ser los estados miembros de la UE los que fijen los valores paramétricos que se apliquen al control de las aguas. Sin embargo, esta precisa un rango para los niveles de radón en agua: el nivel de referencia podrá ser superior a los 100 Bq·L⁻¹ pero deberá ser inferior a los 1000 Bq·L⁻¹.

Asimismo, en el Anexo II, se detalla que debe ser cada estado el que realice los estudios necesarios para conocer los niveles y la naturaleza de las exposiciones al radón en las aguas de consumo humano, incluyendo geología e hidrología de cada zona, el tipo de pozos o la radiactividad de suelos y rocas. Se realizarán controles cuando se valore la posibilidad de encontrar zonas con niveles superiores a los paramétricos establecidos, mediante el muestreo y el análisis al menos una vez al año. Si durante cierto periodo de tiempo, establecido por cada estado, la concentración de radón en agua se mantiene

por debajo del nivel paramétrico (entre 100 y 1000 Bq·L⁻¹), no están obligados a controlar los niveles. Para ello deben disponer de estudios representativos y datos que ratifiquen su decisión.

Según el **Artículo 8: Transposición al Derecho nacional**, esta Directiva debía ser adoptada ante del 28 de noviembre de 2015.

A nivel nacional, y ya en 2016 se publicó el *Real Decreto 314/2016 por el que se establecen los criterios sanitarios de calidad de agua del consumo humano*.

Real Decreto 314/2016

En este Real Decreto 314/2016, y siguiendo con las directrices de la Directiva 2013/51/EURATOM, se ha fijado como valor paramétrico los 500 Bq·L⁻¹. Por encima de este valor, se considera inapropiado, y por debajo, se ha de continuar con la optimización sin suponer riesgo del suministro de agua, considerando acreditada la aplicación de medidas correctoras a partir de los 1000 Bq·L⁻¹.

Se incluye una *Disposición adicional novena: Caracterización de las zonas de abastecimiento en cuanto a exposición del radón*: que incluye la obligatoriedad de establecer la caracterización de las aguas subterráneas utilizadas para la producción de agua de consumo humano según perspectiva de exposición al radón. Se debe llevar a cabo por autoridades sanitarias coordinadas con el Ministerio de Sanidad y las orientaciones del Consejo de Seguridad Nuclear e incluirá: escala y naturaleza de las exposiciones al radón en agua según la geología e hidrología de cada zona, así como la radiactividad de suelo o rocas y qué tipo de captación se realiza, siguiendo las exigencias de la Directiva 2013/51/EURATOM.

Siguiendo con lo establecido por la UE, no será necesario el control de radón si se tiene constancia que durante un periodo de 5 años los niveles de este están por debajo del valor paramétrico establecido. Asimismo, y en función del volumen de agua que se distribuye cada día por punto de abastecimiento, se establece la frecuencia mínima requerida de muestreo y análisis que permita el control del agua de consumo humano que se suministra.

Se establece que el método de análisis seleccionado debe disponer de un límite de detección de 10 Bq·L⁻¹.

2.3.4. Otras normativas y reglamentos

Existen también otras normativas, así como colección de informes técnicos de gran relevancia en el ámbito de la protección radiológica y, en particular, del gas radón. Entre ellas cabe destacar:

UNE-EN ISO 11665

Se trata de una Norma Europea EN ISO, adoptada también por la Norma Internacional ISO. Se basa en la Medición de la radiactividad en el ambiente. Aire: radón-222, y consta de hasta 11 partes entre las que se incluyen una parte inicial sobre los orígenes del radón y los métodos de medida (UNE EN ISO 11665-1) o las metodologías para estimar la tasa de exhalación en superficie (UNE EN ISO 11665-7).

En esta normativa no se establecen valores límite ni tasas de dosis, pero presentan diferentes métodos de medición del radón en aire y su aplicación en investigación, materiales de construcción o materiales impermeables. Proporciona las pautas necesarias para las medidas, los análisis y la posterior determinación de concentración de radón.

UNE-EN ISO/IEC 17025

Esta norma establece los requisitos generales que han de cumplir laboratorios de ensayo y calibración. Permite trabajar bajo unos estándares de calidad, iguales para todos los centros, garantizando los requisitos de competencia y la fiabilidad de los resultados. Incluye requisitos técnicos y de gestión: definición del personal, instalaciones y condiciones ambientales, equipos utilizados, trazabilidad de las medidas y muestreo, informes de resultados, etc.

En particular, y siguiendo con la Directiva 2013/59/EURATOM, los laboratorios que realicen medidas de radón en aire deben estar acreditados por la entidad correspondiente (ENAC, a nivel nacional) según esta norma UNE-EN ISO/IEC 17025.

Informes Técnicos

El Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), en colaboración con universidades y centros de investigación, ha elaborado una Colección de Informes Técnicos y publicaciones que ofrecen, tanto a usuarios como a profesionales del sector, información acerca de la exposición al radón, métodos de medida, protección frente a su inmisión en viviendas, etc. Son documentos de elevado interés ya que permiten conocer los procesos de movilidad del radón, cómo controlar los niveles en el interior de viviendas y espacios públicos, y ofrece diferentes soluciones para prevenir estos niveles que se van actualizando periódicamente.

El CSN elabora también los mapas predictivos y potenciales de radón a nivel nacional.

Guías de Seguridad del CSN

Se trata de documentos técnicos, de carácter no obligatorio, elaborados por el Consejo de Seguridad Nuclear mediante los cuales se ofrecen orientaciones a profesionales del sector y a público en general respecto de la legislación en materia de protección radiológica y seguridad nuclear. Destacan:

- Guía de Seguridad GS 11-01. Directrices sobre la competencia de los laboratorios y servicios de medida de radón en aire.
- Guía de Seguridad GS 11-02 Control de la exposición a fuentes naturales de radiación.
- Guía de Seguridad GS 11-04 Metodología para la evaluación de la exposición al radón en los lugares de trabajo.

CAPÍTULO 3

OBJETIVOS

El objetivo principal de la presente Tesis Doctoral consiste en estudiar el proceso de difusión del gas radón a través del aire y del agua a partir de una fuente sólida, así como el proceso de transferencia agua-aire. Esto permite disponer de la metodología y las herramientas necesarias para predecir las concentraciones de radón en el medio acuoso y en el aire, para posteriormente definir la necesidad de adoptar medidas de mitigación para garantizar la protección radiológica de la población expuesta.

Para la consecución del objetivo principal, es necesario desarrollar una serie de objetivos específicos (OE) que son los siguientes:

- Diseñar y poner a punto un equipo experimental que permita realizar ensayos a escala laboratorio para estudiar los procesos de transferencia del gas radón (OE-1).
- Determinar y analizar experimentalmente la transferencia del gas radón, desde una fuente sólida al aire y desde el agua al aire (OE-2).
- Analizar el efecto de las diferentes condiciones de ensayo en este proceso de transferencia (OE-3).
- Desarrollar ecuaciones dinámicas que modelicen el comportamiento del gas radón para estudiar y analizar los procesos de difusión (OE-4).
- Modelizar matemáticamente los procesos de transferencia de radón en aire y agua (OE-5).

Cada uno de estos objetivos específicos va enlazado con diversas tareas que permiten alcanzar los resultados y metas propuestas, que se presentan en la Tabla 3.1.

Tabla 3.1. Resumen de la relación objetivos-tareas de la investigación

Objetivos específicos	Tareas a desarrollar
OE-1	Selección de las fuentes generadoras de radón. Diseño y selección del equipo experimental. Cálculo de hermeticidad. Puesta a punto de los ensayos: determinación de la homogeneidad de radón en agua y selección del método de extracción de las muestras.
OE-2	Medición del radón en aire generado a partir de una fuente natural durante acumulación. Medición del radón en agua generado a partir de una fuente natural durante acumulación y decaimiento. Medición del radón en aire a partir de su liberación desde el agua durante acumulación y decaimiento.
OE-3	Variación de la fuente generadora y variación del volumen de aire. Variación del volumen de agua ensayado: 25 y 50 L. Variación del estado del agua: estática y en agitación.
OE-4	Estudio de los procesos de transferencia del gas radón en aire y en la interfase agua-aire. Desarrollo de las ecuaciones dinámicas que modelizan el comportamiento del gas radón en los distintos medios estudiados.
OE-5	Aplicación ecuación de continuidad. Obtención de los parámetros de los modelos a partir de los resultados experimentales. Determinación del coeficiente de velocidad de transferencia del radón en condiciones de agua estática y agitación. Estimación teórica de la concentración de radón en agua y en aire durante proceso de decaimiento. Comparación con valor experimental. Determinación de la tasa de emanación de radón en agua. Estimación teórica de la concentración de radón en agua y aire durante proceso de acumulación de radón. Comparación con valor experimental. Comparación de la tasa de emanación en agua y aire.

CAPÍTULO 4

INSTRUMENTACIÓN

En este capítulo se ofrece una introducción teórica sobre las principales técnicas de medida de los niveles de radón, los criterios de selección, así como el uso en función del tipo de muestreo a realizar. Se describe el principio de funcionamiento y las especificaciones técnicas de los detectores utilizados en la presente Tesis Doctoral para la medición de la concentración de radón en diferentes medios. Se describe, para cada detector seleccionado, los procesos de calibración y validación llevados a cabo.

4.1. Técnicas generales para la medida de radón

El radón, en condiciones normales, no está en equilibrio con sus productos de desintegración de vida corta, que suelen adherirse al polvo y aerosoles en suspensión, dado que una pequeña parte se elimina a través de procesos de deposición y sedimentación. Pese a que el riesgo asociado a la exposición al gas radón no es debida a su inhalación sino a la de sus descendientes, muchos de los sistemas de medición determinan los niveles de concentración de radón en aire y no la de sus productos. Normativa, manuales y recomendaciones internacionales se expresan en términos de concentración de ^{222}Rn en aire, que a su vez se relaciona con la de sus descendientes según el factor de equilibrio, F (GS 11.01, 2010) de la ecuación (4.1)

$$F_{Rn} = \frac{C_{eq}}{C_0}, \quad (4.1)$$

donde F_{Rn} es el factor de equilibrio (adim); C_{eq} , la concentración de radón equivalente en equilibrio ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) y C_0 , la concentración de radón en aire en el

instante de la medición ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$). Por defecto, se le asigna un valor de factor de equilibrio de 0.6 al aire libre y 0.4 en espacios cerrados (UNSCEAR, 2000).

Existen numerosas técnicas que permiten conocer los niveles de radón y sus descendientes. La elección del tipo de detector que mejor se ajusta a las condiciones de ensayo y muestreo determinarán la obtención de resultados fiables y reproducibles.

Los criterios de selección varían según los siguientes parámetros:

- Periodo de integración requerido: en continuo, instantáneo o integrado.
- Rango de medida: los niveles de radón varían para viviendas y edificios, al aire libre o en minas, cuevas y balnearios. Se requiere de detectores cuyo límite de detección esté por debajo del valor mínimo de concentración de radón en el punto de muestreo y por encima del valor máximo que se pueda llegar a medir.
- Influencia de condiciones ambientales y meteorológicas: se debe tener en cuenta que cada detector opera a una temperatura, humedad y presión diferente, que influirán en la medida de radón en cualquier medio.
- Autonomía del detector: si requiere de conexión con red eléctrica, si funciona con baterías o si por el contrario funciona de forma pasiva, sin necesidad de conexiones.

Según la Norma ISO 11665, el método de muestreo más apropiado depende también de otros parámetros como la ubicación en la que se van a llevar a cabo las mediciones (minas, cuevas, viviendas, lugares de trabajo, aire libre, etc.), la finalidad de estas mediciones y el nivel de actividad volumétrica de radón esperada, que varía a lo largo del tiempo para un mismo punto de muestreo. Debido a la elevada variabilidad del radón, la selección de la técnica de medida viene determinada principalmente por la duración de cada muestreo según se muestra en la Tabla 4.1.

Tabla 4.1. Resumen duración de cada muestreo en función del tipo de muestreo (Norma ISO 11665:1, 2016).

Tipo de muestreo	Medición	Duración muestreo	Características resultado de la medición
Continuo	Puntual	< 1 hora	Representativo únicamente de la actividad volumétrica en punto y momento determinado.
	Continua	Variable	Representativo durante el muestreo en un punto dado. Observación temporal de actividad volumétrica de radón. Duración de muestreo e intervalo de integración, han de ser compatibles con dinámica del proceso analizado.
	Integrada. Duración corta	Pocos días	Representativo del valor promedio de la actividad volumétrica durante todo el periodo de muestreo en un punto determinado.
	Integrada. Duración larga	Meses	Estimación valor medio anual de la actividad volumétrica en el punto determinado. Permite evaluación de la exposición al radón.

Los periodos de medición de la Tabla 4.1 se definen según la Norma ISO 11665-1:

- **Método de medición puntual:** proporciona directrices para medición puntual de la actividad volumétrica del gas, así como de la concentración de energía potencial alfa de sus descendientes, en atmósferas confinadas o abiertas, para un punto determinado.
- **Método de medición en continuo:** facilita la evaluación de la actividad volumétrica del radón en el aire debida a cambios temporales, en viviendas, lugares de trabajo y edificios públicos, como función de las condiciones meteorológicas de cada ubicación y de las condiciones de ventilación existentes.
- **Método de medición integrada:** medición de actividad volumétrica promedio del gas radón o de la concentración promedio de la energía

potencial alfa de sus descendientes de vida corta en el aire. Los periodos de tiempo varían desde unos días hasta un año (corta o larga duración). Los de larga duración se utilizan para evaluar la exposición al radón y sus productos de desintegración en los humanos.

Siguiendo esta misma clasificación en función del tiempo de exposición requerido para la obtención de resultados fiables, el Consejo de Seguridad Nuclear (GS 11.01, 2010) considera, además, que los sistemas de medida en continuo son sistemas activos que utilizan aire forzado para capturar la muestra; requieren de una alimentación eléctrica (pilas, baterías o conexión a red eléctrica); almacenan la concentración de radón en el tiempo y la lectura de los datos es directa, a través de una pantalla del soporte electrónico. Algunos ejemplos son: detectores de deposición electrostática y espectrometría alfa, cámaras de ionización o células de centelleo. Los sistemas integradores se basan en la lectura de resultados indirecta, requieren de otro equipo para el cálculo de la concentración de radón y operan sin alimentación eléctrica. Los sistemas de detección de trazas, electretes y detectores (cánister) de carbón activo pertenecen a este tipo de sistemas.

A continuación, y de forma general, para las mediciones de radón en aire se pueden utilizar los siguientes tipos de detectores (Norma ISO 11665-1, 2016):

- Centelleo de sulfuro de zinc activado con plata ZnS (Ag): dispone de un fotomultiplicador que detecta los fotones de luz emitidos por los electrones después de su excitación. Ejemplo: detector tipo células de Lucas PMT
- Detectores de carbón activo: basados en la determinación mediante espectrometría de rayos gamma de los descendientes gamma del radón (^{214}Bi y ^{214}Pb) adsorbido en carbón activo. Ejemplo: cánister de carbón activo.
- Ionización del aire: las partículas alfa ionizan el aire que puede ser medido en una cámara de ionización proporcionando actividad volumétrica del radón y concentración de sus descendientes. Ejemplo: detector de ionización AlphaGUARD.
- Semiconductor (detección alfa): detector semiconductor que, a partir de una partícula alfa, convierte esa energía en carga eléctrica. Esta a su vez, se convierte en pulso cuya amplitud es proporcional a la energía alfa, que emiten tanto el radón como sus descendientes. Ejemplo: detectores en continuo tipo RAD7, AlphaE, Radon Scout.
- Detectores de trazas alfa de estado sólido (SSNTD): al pasar por un polímero (detector nuclear) la partícula alfa incidente provoca una ionización. Estas trazas, o marcas sobre el polímero son proporcionales al número de partículas alfa que traspasan el detector. Ejemplo: detector de trazas CR-39.

- Descarga de una superficie polarizada en el interior de una cámara de ionización: disco de politetrafluoroetileno con carga positiva que se inserta en la cámara. La ionización del aire en su interior debida a las partículas alfa provoca una descarga del disco, proporcional a los niveles de radón en aire. Ejemplo: electretes E-PERM.

Las mediciones de radón en agua, aunque pueden realizarse mediante conversiones a partir de los niveles de radón en aire, suelen llevarse a cabo a través de métodos de medición directos basados en el muestreo. Los métodos principales son:

- Centelleo líquido: la muestra de agua que contiene radón se mezcla con el líquido de centelleo y el radón es absorbido en este *cocktail*. Se realiza el conteo de partículas alfa y beta del radón y productos de desintegración (^{218}Po , ^{214}Bi , ^{214}Pb , ^{214}Po) una vez alcanzado el equilibrio mediante la emisión de luz. Ejemplo: detector de centelleo líquido Hidex 600SL, Quantulus.
- Descarga de una superficie polarizada en el interior de una cámara de ionización. El proceso de medición es el mismo que para radón en aire, aunque, en este caso, se deposita la muestra de agua en el interior de una jarra impermeable y el gas es transferido al aire desde donde es medido. En este caso, se utilizan accesorios específicos para detectores como RAD7 o E-PERM, electretes,

Algunos de los detectores, como se ha comentado, se basan en la posibilidad de medir los niveles de radón a través de sus descendientes, a partir de la detección de emisores alfa, retenidos en filtros para su posterior análisis. En general, se utilizan para toma de muestras en continuo.

Tanto los métodos de medición y muestreo como el propio uso de los dispositivos de detección deben seguir unos principios de calidad que garanticen la reproducibilidad y fiabilidad de los resultados obtenidos. Por ello, laboratorios, centros de investigación y entidades que realicen medidas de radón deben disponer de controles de calidad internos y externos, participando de forma periódica en ejercicios de intercomparación y/o calibración de detectores. A continuación, se presentan, en términos generales, las principales técnicas de medida empleadas en esta Tesis Doctoral.

4.2. Medición de radón en aire

Las mediciones de radón en aire se basan en los diferentes tipos de detección definidos en el apartado anterior según la Norma ISO 11665:1. Se puede requerir de una medición preliminar, que generalmente será de corta duración para conocer si hay o no radón en una ubicación dada; se puede realizar un estudio de la exposición, con tiempos de muestreo mayores, que determinen el riesgo para los humanos o un muestreo en continuo si se requiere de medidas diagnósticas para evaluar la aplicación de medidas de mitigación y correctivas. Los detectores utilizados pueden ser monitores en continuo, cámaras de ionización, detectores de trazas (SSNTD), detectores de carbón activo, etc.

A continuación, se presenta la Tabla 4.2 que ofrece una visión general de los diferentes métodos de medida de radón en aire y ejemplos de los detectores que se pueden utilizar en función de las necesidades del tipo de muestreo (Manual OMS, 2015).

Tabla 4.2. Métodos para la medida de radón en viviendas (Manual OMS, 2015).

Método	Tipo de muestreo	Detectores
Medición preliminar	Corta duración	Monitores en continuo Cámara ionización con electretes Detector de carbón activo
Evaluación de la exposición	Integración temporal	Detector de trazas alfa Cámara ionización con electretes Monitores en continuo
Mediciones diagnóstico: posible aplicación medidas correctivas.	En continuo	Monitores en continuo

Durante la ejecución de esta Tesis Doctoral se han llevado a cabo ensayos preliminares, que incluye mediciones de campo y a escala laboratorio y ensayos experimentales de transferencia, realizados en el laboratorio. Las mediciones de campo de radón en aire se han realizado mediante el sistema de detección E-PERM, electretes. En los ensayos a escala laboratorio, tanto en los ensayos

preliminares como los experimentales de transferencia, se ha utilizado el detector en continuo Radon Scout Plus. El detector Radon Scout PMT se ha utilizado para la verificación del Radon Scout Plus.

La Figura 4.1 muestra el diagrama de la instrumentación utilizada en cada caso.

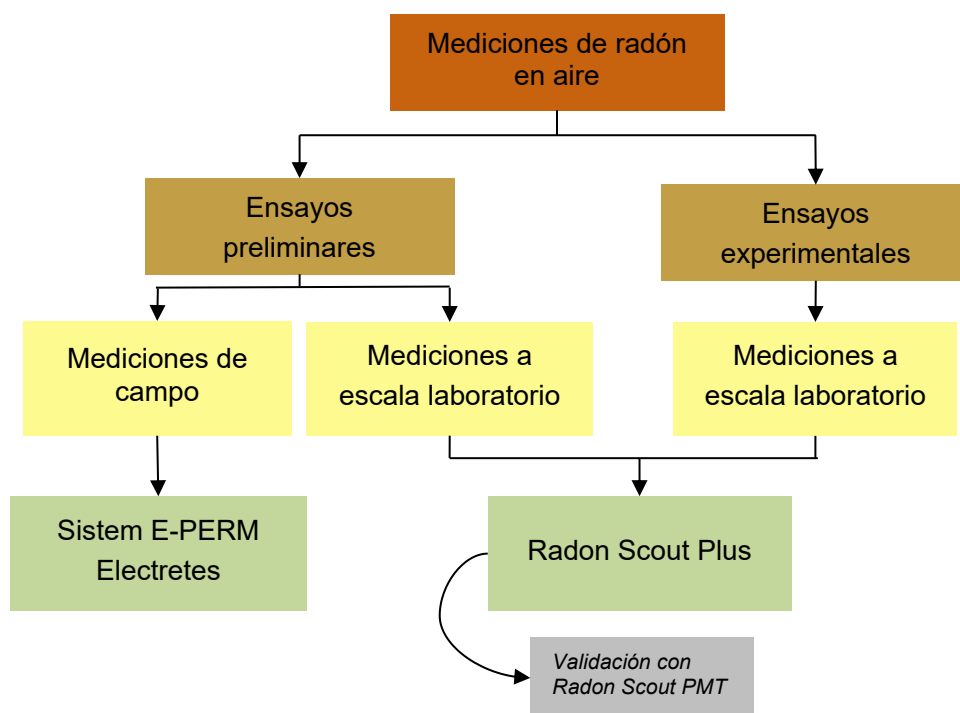


Figura 4.1. Diagrama de los sistemas de detección de radón en aire utilizados en los ensayos de la Tesis Doctoral.

A continuación, se describe el principio de funcionamiento de cada detector, sus especificaciones técnicas y su procedimiento de medida.

4.2.1. Sistema de medición E-PERM, electretes

El equipo de detección o detector E-PERM está formado por un electrete que se enrosca a una de cámara de acumulación de radón. El electrete es un disco de Teflón (politetrafluoroetileno, PTFE) con carga positiva, alojado en un soporte de plástico eléctricamente conductor.

A medida que el radón y sus descendientes se desintegran dentro de la cámara que contiene al electrete, se produce la liberación de partículas alfa y beta. Estas partículas chocan con las moléculas de aire provocando ionización. La molécula de aire resultante en este choque se queda con carga positiva o negativa. Los iones cargados negativamente son atraídos por la superficie del electrete, cargado positivamente y se produce la reducción del voltaje. A partir de esta descarga de potencial durante un periodo de tiempo de exposición conocido, se obtiene la concentración de radón en el ambiente. Para la lectura del voltaje se utiliza el lector E-Reader, también ofrecido por el fabricante Rad Elec. Existen dos tipos de electretes en función de la concentración de radón a medir: electretes de corto plazo (ST-Short Term) y electretes de largo plazo (LT-Long Term). En la Figura 4.2 se muestra un ejemplo de un electrete.



Figura 4.2. Electrete tipo Short Term (ST).

En función de los niveles de concentración de radón a medir, existen dos tipos de cámaras de diferentes volúmenes: cámara tipo L-OO (58 mL) y tipo S (210 mL). En la base de la cámara se encuentra enroscado el electrete.

La cámara S permite el paso de aire a través de un mecanismo de enroscado de apagado y encendido mientras que la cámara L-OO presenta un sistema de cerrado-abierto en función de la posición de la solapa rectangular. En la Figura 4.3 se muestran ambas cámaras.



Figura 4.3. Cámaras de radón del sistema E-PERM. (A) Cámara tipo S; (B) cámaras tipo L-OO en posición cerrada.

Las especificaciones técnicas del sistema de detección E-PERM, electretes, se muestran en la siguiente Tabla 4.3.

Tabla 4.3. Especificaciones técnicas del detector E-PERM (Manual E-PER, 2011).

Tipo de medida	Difusión en interior de cámara Ionización aire por emisión de partículas α
Sensibilidad	De 296 Bq·m ⁻³ -día (configuración SST) hasta 25160 Bq·m ⁻³ -día (configuración LLT-00)
Rango de medida	De 12.65 kBq·m ⁻³ -día (configuración SST) hasta 979.57 kBq·m ⁻³ -día (configuración LLT-00)
Error	± 5%
Condiciones ambientales	0 - 100% HR sin condensar
Sensor de temperatura	0°C - 45 °C
Sensor de humedad	0 - 100% HR

El método de medida se basa en ubicar los detectores a una altura aproximada de 1 metro sobre el nivel del suelo y también a 1 metro de distancia de paredes o puertas. No deben colocarse ni en el interior de elementos cerrados (cajones, vitrinas o armarios) ni próximos a corrientes de aire ni expuestos directamente al sol. Una vez ubicado, se abre el detector y se anota la fecha y hora de inicio del ensayo. Pasado el tiempo de exposición, dependiendo de si son de corto periodo (entre 3 y 7 días) o de largo (2-3 meses), se vuelve a cerrar/apagar la cámara. Se anota la fecha y hora de finalización del muestreo y se mide el voltaje mediante el lector E-Reader. La caída de potencial determina la concentración de radón en aire.

4.2.2. Radon Scout Plus

El detector Radon Scout Plus es un monitor en continuo de radón en aire de SARAD Company. La cantidad de radón en aire se mide a través del detector de silicio de estado sólido del interior de la cámara de difusión. Se cuantifican las partículas alfa que emiten los productos de desintegración del radón. El detector se muestra en la Figura 4.4.



Figura 4.4. Detector Radon Scout Plus.

El Radon Scout Plus tiene unas dimensiones de 175 x 135 x 55 mm y un peso de 800 g por lo que este detector es ampliamente utilizado en el campo de las medidas de radón en aire dado su pequeño tamaño. Puede almacenar hasta 16000 datos de las medidas realizadas que posteriormente pueden ser descargadas a través del software Radon Vision. En la parte frontal, tal y como se muestra en la Figura 4.4 el detector tiene una pestaña de apagado y encendido *STOP/RUN* y una luz led, en verde cuando está en marcha y en naranja cuando se está acabando la batería. Justo encima, existen una entrada tipo HDMI y otra USB para su conexión con el ordenador. En el lateral derecho, la tapa de plástico negra cubre la zona de las baterías, que ofrecen una autonomía de funcionamiento de hasta 3 meses. En la parte superior hay una pequeña ventana que muestra los valores de concentración medidos en cada intervalo de medición seleccionado, el valor promedio durante todo el tiempo de exposición, así como la fecha de inicio del ensayo.

Las especificaciones técnicas de este detector se muestran en la Tabla 4.4.

Tabla 4.4. Especificaciones técnicas Radon Scout Plus (Radon Scout Plus Manual, 2017).

Tipo de medida	Espectrometría α en cámara de difusión Colector de HV (<i>high voltaje</i>) y detector de Si
Sensibilidad	1.8 cpm/kBq/m ³
Rango de medida	0 Bq·m ⁻³ - 2 MBq·m ⁻³
Error	± 5%
Condiciones ambientales	-10 hasta 40 °C; 0..100% HR sin condensar
Sensor de temperatura	-20 °C - 80 °C
Sensor de humedad	0 - 100% HR
Sensor de presión	800 - 1200 mbar

El procedimiento de medición se basa seleccionar el intervalo de medición, generalmente fijado en una hora, a través del software *Radon Vision*. Este a su vez permite fijar un valor de alerta por encima del cual empezará la luz led a parpadear en verde. Esto se utiliza para las mediciones al aire libre en las que se pretende determinar si se exceden los límites legislativos, pero para esta investigación, este parámetro resulta indiferente. Asimismo, permite también seleccionar el intervalo de muestreo de cada ensayo.

El detector se deposita en la ubicación en la que se van a realizar todas las mediciones de radón en aire. La pestaña *RUN* inicia los ensayos y, una vez en marcha, aparece una luz verde parpadeante que se mantendrá durante todo el tiempo de ensayo. Se apaga el detector a través de la pestaña *STOP* y los valores de radón en aire quedan registrados en su memoria interna. Después de cada ensayo, el detector debe volver a encenderse, en un ambiente libre de radón, durante al menos 24 horas para su purga, permitiendo que entre aire limpio y se eliminen los restos de contaminación que hayan quedado en su interior. En caso de haber sido expuesto a niveles altos de concentración, la purga debe prolongarse tanto como sea necesario hasta que el nivel de radón medido por el Radon Scout Plus se corresponda con los niveles ambientales normales. Para ello se puede realizar una inspección visual de la concentración a través de la ventana de la parte superior del detector que muestra para cada intervalo de tiempo el valor de la concentración.

4.2.3. Radon Scout PMT

El detector Radon Scout PMT es un monitor en continuo de radón en aire de SARAD Company. Este detector utiliza una cámara de centelleo ZnS(Ag) (celda Lucas) que convierte la radiación recibida en pulsos de luz que son detectados por el tubo fotomultiplicador (*Photo Multiplier Tube, PMT*) de su interior.

Los detectores de centelleo se basan en que algunos materiales como el ZnS(Ag) tienen la propiedad de emitir luz tras interaccionar con ellos la radiación ionizante. La luz emitida por el centelleador se envía al fotomultiplicador que, a su vez, convierte la luz incidente en impulsos eléctricos.

Para los ensayos, las celdas Lucas se han utilizado en modo muestreo por captura (*grab sampling mode*). Esto supone que, después de llenar la celda con la muestra de aire, los terminales se cierran y se inicia la medida después de 2 horas, cuando se alcanza el equilibrio del radón con su descendiente ^{214}Po .

En este caso, el Radon Scout PMT sí dispone de una bomba de membrana que se puede encender y apagar de forma manual, y que puede utilizarse para el muestreo continuo de aire o para llenar las celdas de Lucas con la muestra de aire. El detector se muestra en la Figura 4.5.

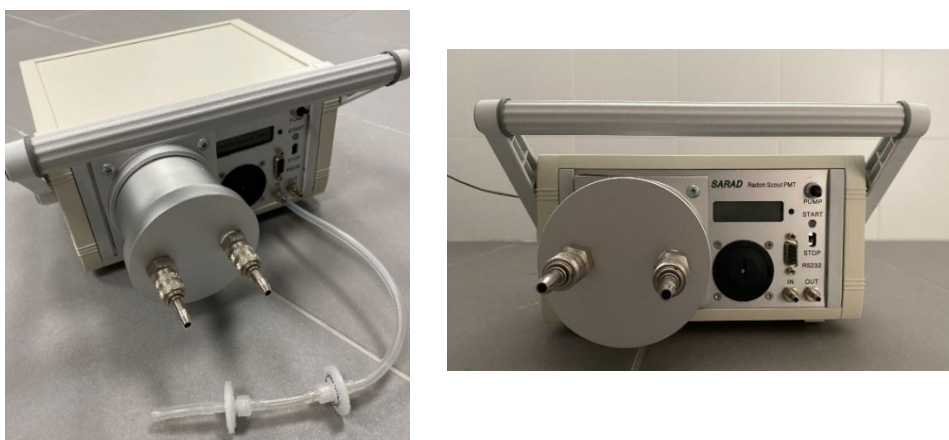


Figura 4.5. Detector Radon Scout PMT.

Mediante el análisis continuo de la forma de la señal, este instrumento de medida permite medir límites de detección bajos eliminando casi por completo el fondo.

El peso del Radon Scout PMT es de 4 kg aproximadamente y sus dimensiones 232 mm x 182 mm x 135 mm, lo que también facilita su transporte y uso.

Puede almacenar hasta 2047 medidas, pero, sin embargo, la autonomía de las baterías, aun cuando se conecta a la corriente eléctrica, no supera las 140 horas. Esto limita su uso para periodos largos de exposición. Dado que el fabricante es el mismo que Radon Scout Plus, el software a utilizar para la descarga de datos y ajuste de los parámetros de medida es también el *Radon Vision*.

El procedimiento de medida es muy similar al del detector Radon Scout Plus ya que ambos presentan prácticamente la misma interfaz. El intervalo de medida en cada medición es de 60 minutos.

Ubicado en el punto de ensayo, se inician las mediciones mediante la pestaña *RUN*. Finalizado el tiempo de medida, se apaga el detector (pestaña *STOP*) y se vuelve a encender para su purga. Tanto los datos de concentración como la purga quedan registrados en la memoria interna y pueden descargarse directamente en formato .txt en el ordenador. En este caso, y dado que se dispone de una bomba, la purga debe realizarse con bomba encendida y también apagada, garantizando la limpieza del detector. Dado que las baterías tienen una autonomía menor, en todos los ensayos realizados en esta Tesis Doctoral, el detector ha estado conectado a la red eléctrica. Los tiempos utilizados para las mediciones de radón en aire varían en función de la necesidad de cada ensayo. Las especificaciones técnicas del detector se muestran en la Tabla 4.5.

Tabla 4.5. Especificaciones técnicas Radon Scout PMT (Radon Scout PMT Manual, 2011).

Tipo de medida	Celda Lucas, detector de centelleo Zns(Ag) con fotomultiplicador
Sensibilidad	22 cpm/kBq/m ³
Rango de medida	2 Bq/m ³ - 10 MBq/m ³
Error	± 5%
Condiciones ambientales	-10 - 40 °C; 0 - 100% HR sin condensar
Sensor de temperatura	-20 °C - 80 °C
Sensor de humedad	0 - 100% RH
Sensor de presión	800 - 1200 mbar

4.3. Medición de radón en agua

El contenido de radón en agua no se debe al radio disuelto en agua sino a su desintegración en las rocas y sedimentos. Puede encontrarse también en sistemas de abastecimiento debido al radio que se ha adsorbido en las incrustaciones de algunas tuberías conformadas de hierro (Zeeb et al., 2015).

El riesgo y peligrosidad del radón en agua reside principalmente en su inhalación cuando es liberado al aire en actividades domésticas o industriales (industria cerámica, plantas depuradoras de agua, etc.) y no solo durante la ingesta. Es necesario disponer de técnicas de detección en el medio acuoso que permitan conocer la magnitud de la contaminación y poder prever así su posterior acumulación en aire.

Existen varios métodos de detección como el conteo directo de radiación gamma, las cámaras de ionización, la transferencia a través de membranas, la medición a través de la desemanación y el recuento por centelleo líquido. Estas dos últimas técnicas, son las más habituales en la detección de radón en agua (Zeeb et al., 2015).

- **Recuento por desemanación:** el radón disuelto en agua se extrae a un gas, libre de radón, que es transferido a un equipo de medición (célula de centelleo, monitor en continuo, etc.) La muestra de agua es transferida a un dispositivo que la burbujea mediante un gas (por ejemplo, nitrógeno), con un volumen 5-10 veces superior que el del líquido. Se debe realizar el recuento pasadas las 3 horas, hasta que el equilibrio entre el radón y sus descendientes se haya alcanzado.
- **Recuento por centelleo líquido:** técnica de medida utilizada ampliamente por su exactitud y precisión, que permite gestionar un gran volumen de muestras sin requerimientos técnicos arduos ni laboriosos. En este caso, y dado que el radón presenta cierta solubilidad en medios orgánicos, se mezcla con la disolución del centelleo (*cocktail*) formando un sistema de dos fases acuosa/orgánica. El recuento se realiza a partir de la emisión de partículas alfa y beta del radón y sus descendientes desde el líquido centelleo.

Durante la ejecución de esta Tesis Doctoral, se han seleccionado diferentes métodos de medida de radón en agua. Para los ensayos preliminares, se han utilizado los detectores RAD7-H₂O y el sistema E-PERM de electretes en las mediciones de campo y el detector Hidex 600 SL en los ensayos a escala laboratorio. En los ensayos experimentales de transferencia, realizados a escala laboratorio, se ha utilizado también el detector de centelleo Hidex 600 SL.

En la Figura 5.6. se muestra un esquema de los detectores de radón en agua utilizados en cada tipo de ensayo.

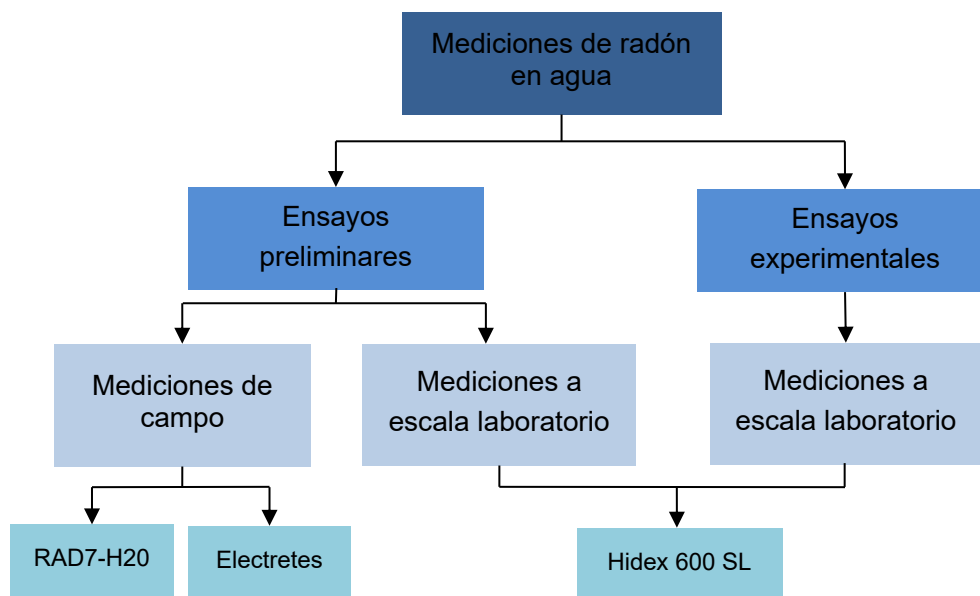


Figura 4.6. Diagrama de los sistemas de detección de radón en agua.

A continuación, se detalla el funcionamiento de cada detector, sus especificaciones técnicas y el procedimiento de medida.

4.3.1. RAD7-H20

El detector RAD7, de Durrige Company, es un monitor rápido, eficaz y versátil que permite la medida de radón en los procesos de emanación, exhalación, en aire y agua, en función del accesorio que se conecte. Tiene unas dimensiones de 29.5 cm x 21.5 cm x 27.9 cm y un peso aproximado de 4.35 kg lo que permite su fácil transporte a los diferentes puntos de muestreo. En la Figura 4.7 se muestra el detector RAD7:



Figura 4.7. Detector de radón RAD7 (Durrige RAD7 Manual, 2015 (1)).

El RAD7 detecta las desintegraciones alfa del radón y sus descendientes que se producen en el interior del monitor. Está formado por un detector de un material semiconductor, generalmente silicio, de iones implantados que permiten la transformación de la radiación alfa que reciben en una señal eléctrica. Basado en la espectrometría alfa, el RAD7 determina electrónicamente la energía de cada partícula alfa detectada distinguiendo así qué isótopo produce la radiación. Para ello, sus circuitos electrónicos amplían la señal y la acondicionan para convertirla posteriormente en formato digital.

Dispone de un microprocesador que recoge esta señal y la almacena en función de la energía de cada partícula, que se muestra en forma de espectro como la Figura 4.8

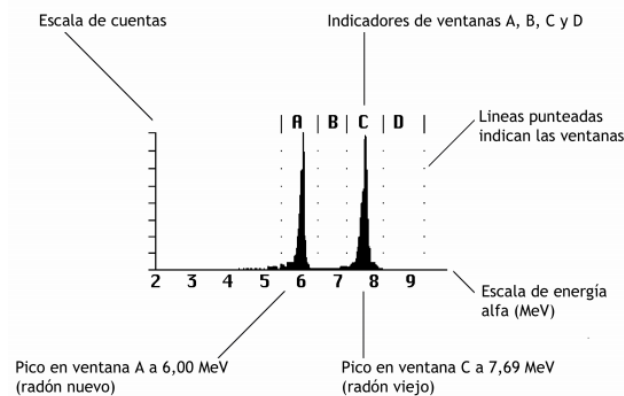


Figura 4.8. Espectro de energía alfa ofrecido por la impresora del RAD (Durrige RAD7 Manual, 2015).

El RAD7, por tanto, mide directamente la concentración de gas radón. Para ello, extrae las muestras de aire que se han ido bombeando y que pasan a través de un filtro fino a la entrada del monitor. Este filtro retiene los descendientes y únicamente permite el paso del radón. Las muestras las deposita sobre la cámara, donde se desintegran según su propia constante de desintegración. Durante el proceso, los descendientes emisores de partículas alfa son detectados, sobre todo los isótopos del polonio. El RAD7 únicamente detecta las partículas alfa, excluyendo así beta o gamma y, por tanto, es inmune a la radiación de fondo. Se trata de un monitor en continuo, lo que permite analizar la variación de la concentración de radón en aire durante el tiempo de muestreo. Esto facilita el análisis de las posibles oscilaciones y su causa (cambios climatológicos, caída de presión, variaciones diurnas y nocturnas, etc.). Opera a una temperatura que oscila entre los 0 °C y los 40 °C, y una humedad relativa externa de entre 0 y 95%. Sin embargo, en el interior de la cámara la humedad relativa interna no debe superar el 10% considerando la afinidad del gas radón por las moléculas de agua. El límite de detección varía entre los 4 y los $7.5 \cdot 10^5$ Bq·m⁻³.

Adicionalmente, y antes de empezar cualquier medida se debe comprobar la memoria del detector para poder almacenar los ensayos realizados, así como el estado de las piedras drieritas, que deben estar siempre secas antes cada prueba para eliminar la humedad de la muestra.

El sistema RAD7 dispone también de una impresora, conectada por infrarrojos al monitor, que puede ser utilizada o no. En caso afirmativo, para cada intervalo de tiempo muestreado, ofrecerá los valores de concentración e incertidumbre asociada, humedad, temperatura y el espectro alfa de la muestra analizada. Todos estos datos quedan registrados en la memoria del detector y pueden ser descargados directamente al ordenador para su posterior análisis y tratamiento. El instrumento de medida se muestra en la Figura 4.9.



Figura 4.9. Detector RAD-H20 (RAD H20 Manual, 2020).

Las especificaciones técnicas del monitor en continuo RAD7 se muestran en la Tabla 4.6.

Tabla 4.6. Especificaciones técnicas del RAD7 (DurrIDGE RAD7 Manual, 2015).

Tipo de medida	Colección electroestática de partículas alfa mediante análisis espectro Detector de silicio
Sensibilidad	0.0067 cpm/(Bq·m ⁻³) en modo SNIFF 0.013 cmp/(Bq·m ⁻³) en modo NORMAL
Rango de medida	4 Bq·m ⁻³ - 0.75 MBq·m ⁻³
Error	± 5%
Condiciones ambientales	0 - 45 °C; 0 - 100% HR sin condensar
Sensor de temperatura	0 - 45 °C
Sensor de humedad	0 - 100% HR

El RAD-H₂O es el accesorio del monitor RAD7 que permite medir la concentración de radón en agua. Este dispositivo consta de tres componentes: el monitor RAD7, el vial de agua con tapón para la aireación y la unidad desecante, que en este caso es un tubo de menor tamaño que también contiene piedras drieritas y permite eliminar la humedad de la muestra.

Se dispone de dos viales para la toma de muestras: uno de 250 mL y otro de 40 mL. Para muestras con concentraciones de hasta 300 Bq·L⁻¹ es recomendable utilizar el del 250 mL, mientras que, para concentraciones superiores, se recomienda utilizar el vial de 40 mL. En caso de no conocer los rangos de concentración con los que se va a trabajar, el fabricante recomienda coger muestras de ambos volúmenes. Se bombea el agua del vial, lo que facilita la liberación del radón del agua al aire, que es capturado por el detector y succionado hasta su interior. El proceso de detección es el mismo que el detallado en el apartado de la descripción del monitor RAD7. Los valores de concentración son, por tanto, medidos a través del aire al burbujear la muestra de agua. El propio detector, cuando ofrece los resultados, los convierte de nuevo, en función del volumen de vial empleado, en concentración de radón en agua (Bq/L).

Las dimensiones del RAD7, ya descritas anteriormente, y el fácil manejo del accesorio RAD7-H₂O favorecen su uso en cualquier punto de ensayo, en particular, en medidas de campo.

El procedimiento experimental de medida se basa en el muestreo de agua en el vial de cristal, que debe rellenarse evitando la formación de burbujas de aire. Se enrosca el vial al accesorio H₂O, que a su vez formará un circuito cerrado con el monitor RAD7. Se selecciona el protocolo de medida *Wat-40* o *Wat-250* (según el vial utilizado) y se deja midiendo 30 min. Antes y después de cada prueba debe purgarse el monitor RAD7 mediante la captura de aire libre de radón (aire en condiciones ambientales normales y ausencia de radón). Asimismo, debe verificarse que la humedad relativa interna es inferior al 15% y que la torre de desecado permanece en las condiciones óptimas de trabajo: las drieritas se mantienen de color azul.

4.3.2. Sistema E-PERM-H₂O

El sistema E-PERM-H₂O lo conforma el electrete enroscado a una cámara tipo S que se encuentra suspendido en el interior de una jarra impermeable al radón. En su interior, sobre la base, se deposita un vial abierto, que contiene la muestra de agua. El radón es liberado al aire contenido en la jarra que se difunde en el interior de la cámara S, tal y como se ha detallado en el apartado del sistema E-PERM para la medida de radón en aire. Las especificaciones técnicas de los electretes se han detallado previamente, en la Tabla 4.3.

En la Figura 4.10 se muestra el sistema de detección E-PERM.



Figura 4.10. Detector E-PERM-H₂O para la medida de radón en agua.

El procedimiento de medida se basa también en capturar la muestra de agua evitando la formación de burbujas. Se introduce el vial en el interior de la jarra y se cierra la tapa, con la cámara S enroscada al electrete ya suspendida. A través de la diferencia de voltaje antes y después de la exposición, se obtiene la concentración de radón en agua mediante la hoja de cálculo que ofrece el fabricante.

4.3.3. Detector de centelleo Hidex 600SL

Uno de los métodos más utilizados para la medida de radón en agua es el recuento por centelleo líquido. En este caso se ha utilizado el detector Hidex 600SL, de Hidex Company, que permite detectar los nucleidos emisores de beta o alfa. El equipo se muestra en la siguiente Figura 4.11.

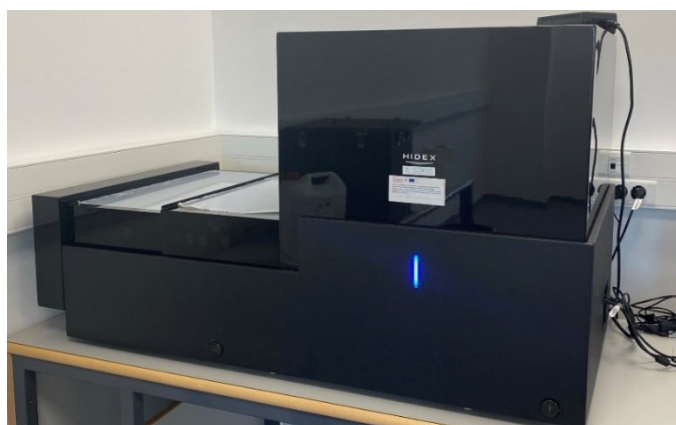


Figura 4.11. Detector de radón en agua Hidex 600 SL.

El detector mide luz de baja intensidad que se produce cuando la muestra de agua, que contiene radón y emite radiación beta, se mezcla con líquido de centelleo. Este está compuesto por un disolvente y, al menos, un flúor. La luz, en forma de ráfagas (de hasta varios cientos de fotones), se recoge en los fotocátodos de los tubos fotomultiplicadores (PMT) del interior del Hidex 600SL y es transformada en señal eléctrica, en forma de espectro, que permite conocer la concentración de radón en agua.

Las muestras de agua, mezcladas con el líquido de centelleo se almacenan en racks para su posterior análisis. Cada rack dispone de un código de barras identificativo leído por el detector y que se corresponde con un modelo de cálculo ofrecido por el fabricante. Los racks, junto con los viales y el código de barras se muestran en la Figura 4.12.

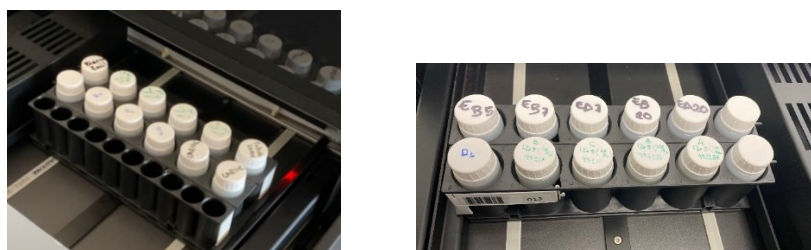


Figura 4.12. Racks con viales de muestras de radón en agua.

Este detector presenta unas dimensiones de 125 cm x 69 cm x 64 cm y un peso de 200 kg. El tamaño del Hidex 600 SL exige que sea instalado en un laboratorio o espacio fijo y que no sea transportable. Las muestras de agua deben recogerse en el punto de medida, ser mezcladas con el líquido de centelleo (a ser posible) y llevadas hasta el Hidex 600 SL. El fabricante facilita el software MicroWin que ofrece la concentración de radón en agua (en $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$), los espectros de la muestra y otros parámetros característicos de cada muestra como las cuentas por minuto.

Las mediciones se basan en el método directo, en el cual la muestra de agua se mezcla con el *cocktail* a través de la agitación del vial que es analizado posteriormente en el detector. Las especificaciones técnicas del detector Hidex 600SL se muestran en la Tabla 4.7.

Tabla 4.7. Especificaciones técnicas Hidex 600SL (Hidex 600 SL Specifications, 2015)

Tipo de medida	Mezcla de agua con líquido centelleo
Sensibilidad	7.5 cpm
Error	5%
Condiciones ambientales	10 - 40 °C 80% de HR máxima $T^a \leq 31$ ° C Disminuye linealmente a HR 50% a 40° C.

El procedimiento de muestreo se basa en extraer una muestra de 8 mL de agua mediante una pipeta e introducirla en el vial de teflón, que ya contiene 12 mL de líquido de centelleo MaxiLight. La alícuota de agua debe sumergirse por

debajo del líquido para evitar que el radón se libere al aire que pueda contener el vial. Se agita durante unos minutos hasta conseguir una muestra homogénea. Una vez mezclado, se espera 3 horas hasta que el gas radón alcance el equilibrio con sus descendientes y se pueda determinar la concentración del gas. La lectura de los resultados se realiza a través del software *MicroWin*.

4.4. Determinación de la actividad de las fuentes generadoras de radón utilizadas

Las fuentes generadoras de radón que se han utilizado a lo largo de esta Tesis Doctoral han sido caracterizadas, de forma previa a su utilización, mediante la determinación de su actividad. Para ello, se ha utilizado un detector de germanio (Canberra, modelo BEGe 3830 7500SL en configuración vertical), que se muestra en la Figura 4.13.

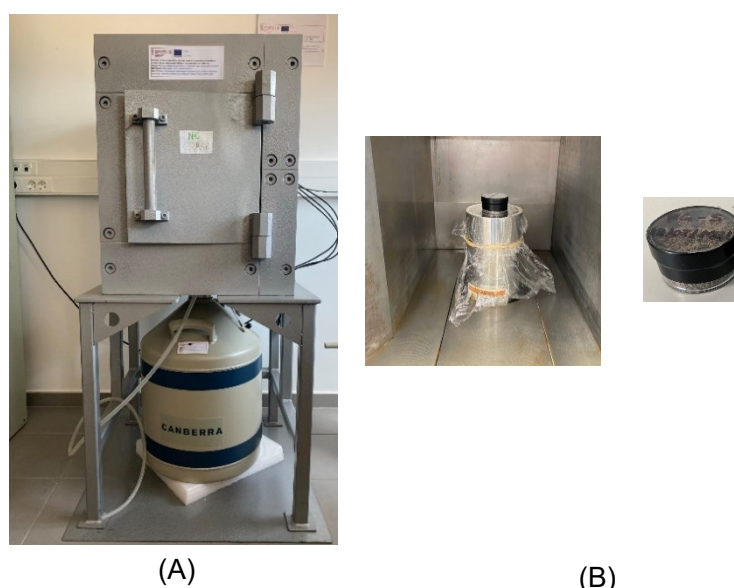


Figura 4.13. (A) Blindaje del detector de germanio Canberra. (B) Detector de germanio y muestra de una placa petri modelo

Se trata de un equipo que detecta la energía que emiten las partículas gamma de una muestra en un rango de 3 keV a 3 MeV (por espectrometría gamma). El modelo BEGe está diseñado con una estructura de electrodo que

mejora la resolución a bajas energías y, además, se ha fabricado con germanio con un perfil de impurezas que mejora la recolección de la carga y mejora la resolución y la forma del pico a altas energías. Esto garantiza una buena resolución y la forma del pico en un rango medio de energías, imprescindible en análisis de espectros complejos. El área del detector es de 38 cm² y tiene un espesor de 30 mm.

La muestra se introduce en una placa petri de dimensiones conocidas y se ubica sobre el detector, como se muestra en la Figura 4.13 (B). Las mediciones se realizan en el interior del blindaje cerrado.

En el detector, se producen interacciones de la radiación gamma incidente que emite la muestra con el cristal semiconductor que lo conforma. Se provoca la liberación de carga eléctrica, que se captura mediante la aplicación de una elevada diferencia de potencial en el sistema, proporcionada por una fuente de tensión que está conectada al detector. Los pulsos eléctricos emitidos son proporcionales a la energía que emiten los fotones que se representa en un espectro. Cada radionucleido se determina a través de su pico, en un rango de energías determinado.

La actividad de radón se determina a partir de los picos de energía de sus descendientes ²¹⁴Pb y ²¹⁴Bi obtenidos en el espectro, a través del software *Gamma Acquisition & Analysis*. El tiempo de ensayo depende de la actividad de la fuente.

En la Tabla 4.8 se muestran las especificaciones técnicas de mayor relevancia del detector de germanio.

Tabla 4.8. Especificaciones técnicas del detector de germanio BEGe 3830 (Broad Energy Germanium Detectors. Canberra, 2016).

Tipo de medida	Espectrometría gamma
Eficiencia relativa (%)	≥ 34
Resolución (keV)	A 5.9 keV de energía: 0.45 A 122 keV de energía: 0.75 A 1332 keV de energía: 1.90
Condiciones ambientales	Aislado del exterior mediante blindaje, que requiere protección frente a humedad para evitar su corrosión. Se recomienda no trabajar a temperaturas extremas.

4.5. Validaciones de los detectores

En este apartado se describen los procesos de validación de los principales detectores empleados en este estudio. La validación confirma, a partir del aporte de evidencias objetivas, que se cumplan los requisitos particulares (ISO 17025, 2005). En este caso, los procesos de validación/verificación se llevan a cabo a partir de valores conocidos de actividad

4.5.1. Validación del sistema de electretes E-PERM

El control de calidad del sistema de detección de radón en aire E-PERM, se ha basado en todos los procedimientos de calibración y verificación llevados a cabo mediante la colaboración del Laboratorio de Radiactividad Ambiental (LRA) y el grupo de investigación ISIRYM-Senubio.

Durante la ejecución de esta Tesis Doctoral, se ha participado de forma paralela en el proceso de acreditación en los ensayos de medida de la concentración de radón mediante electretes.

La validación se basa en la participación en pruebas de aptitud e intercomparaciones. Se evalúan los parámetros de precisión y exactitud.

Precisión

Se evalúa en condiciones de repetibilidad o reproducibilidad. Se determina mediante el análisis de la concentración de actividad del radionucleido, en este caso radón, en materiales de referencia o bien a partir de los resultados obtenidos en ejercicios de intercomparación o calibración. Los métodos de cálculo más comunes son:

- **Desviación estándar de la muestra**, calculada según la ecuación (4.2)

$$s_{\text{grupo}} = \sqrt{\frac{\sum (C_{Rn_{media}} - C_{Rn})^2}{(n - 1)}}, \quad (4.2)$$

donde $C_{Rn_{media}}$ es la concentración media total de radón de cada grupo de exposición ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$); C_{Rn} es la concentración de radón obtenida de cada electrete (Bq/m^3) y n es el número de electretes.

- **Porcentaje de desviación estándar (%)**, calculado según la ecuación (4.3)

$$\%S = \frac{S_{grupo}}{C_{Rn_{media}}} 100. \quad (4.3)$$

Desde 2014, se ha ido participando en 7 pruebas de aptitud y calibraciones. Los resultados previos a la ejecución de la tesis y los llevados a cabo durante la misma, se recogen en la Tabla 4.9.

Tabla 4.9. Resultados obtenidos en las mediciones de radón en aire en intercomparaciones pruebas de aptitud con electretes.

Prueba - año	<i>n</i>	$C_{Rn_{ref}}$	$C_{Rn_{exp}}$	S_{grupo}	$S_{grupo}(\%)$
P1 - 2014	3	132 ± 8	176 ± 13	15.46	8.76
P2 - 2018	10	250 ± 30	212 ± 9	8.11	3.83
P3 - 2014	3	1184 ± 47	1287 ± 121	7.16	0.56
P4 - 2018	10	2410 ± 130	2620 ± 253	106.80	4.08
P5 - 2014	5	13217 ± 1609	15254 ± 492	23.67	0.15
P6 - 2014	5	17110 ± 1545	16615 ± 792	5.44	0.03
P7 - 2014	8	31614 ± 632	29645 ± 1351	3.43	0.01

Como se observa, el porcentaje de desviación estándar no supera en ningún caso el 15%, valor que se considera aceptable según los criterios internos establecidos en el laboratorio.

Exactitud

Este parámetro se determina mediante la comparación del valor obtenido por el laboratorio y el de referencia ofrecido por la entidad organizadora de la prueba.

- **Sesgo**, según la ecuación (4.4) (Jornadas Calidad, 2010)

$$Sesgo = \frac{C_{Rn_{media}} - C_{Rn_{referencia}}}{C_{Rn_{referencia}}}, \quad (4.4)$$

siendo $C_{Rn\text{media}}$ la concentración media total de radón de cada grupo de exposición ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) y $C_{Rn\text{referencia}}$ es la concentración media total de radón dada por el laboratorio ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$).

- **Parámetro** u_{test} según la ecuación (4.5) (Jornadas Calidad, 2010)

$$u_{test} = \frac{|C_{Rn\text{referencia}} - C_{Rn\text{media}}|}{\sqrt{u(C_{Rn\text{referencia}})^2 + u(C_{Rn\text{media}})^2}} \quad (4.5)$$

Los resultados de u_{test} se comparan con valores críticos especificados en tablas estadísticas (*t-statistic*), para determinar si difieren significativamente de los de los valores esperados en un nivel de probabilidad dado (IAEA, 2002). Estos valores se muestran en la Tabla 4.10.

Tabla 4.10. Condiciones de probabilidad del parámetro u_{test} (IAEA, 2002)

Condición	Probabilidad	Estado
$u_{test} < 1.64$	Mayor que 0.1 (Confianza < del 90%)	Los resultados obtenidos no difieren del valor esperado significativamente
$1.64 < u_{test} < 1.95$	Entre 0.1 y 0.05 (Confianza entre 90% y 95%)	Los resultados obtenidos probablemente no difieren significativamente del valor esperado
$1.95 < u_{test} < 2.58$	Entre 0.05 y 0.01 (Confianza entre 95% y 99%)	No está claro si los resultados obtenidos difieren significativamente del valor esperado
$2.58 < u_{test} < 3.29$	Entre 0.01 y 0.001 (Confianza entre 99% y 99.9%)	El resultado obtenido es probablemente significativamente diferente del valor esperado
$u > 3.29$	Inferior a 0.001 (Confianza inferior a 99.9%)	Los resultados obtenidos son significativamente diferentes del valor esperado.

En la Tabla 4.11 se muestran los resultados obtenidos en la validación de los electretes E-PERM.

Tabla 4.11. Resumen resultados exactitud del método.

Prueba	$C_{Rn\ ref}$	u_{ref}	$C_{Rn\ media}$	u	<i>Sesgo</i> (%)	u_{test}
P1 - 2014	132	8	176.36	12.7	33.61	2.96
P2 - 2018	250	30	211.64	9.435	15.34	1.22
P3 - 2014	1184	47	1287.33	120.66	8.73	0.79
P4 - 2018	2410	130	2620.34	253.15	8.73	0.74
P5 - 2014	13217	1609	15254	492	15.42	1.21
P6 - 2014	17110	1545	16615	792	-2.89	0.28
P7 - 2014	31614	632	29644.63	1351.5	-6.23	1.32

Tal y como se observa en la tabla anterior, la prueba P1 presentan un valor de u_{test} en el rango $2.58 < u < 3.29$, por lo que, con una probabilidad entre 0.01 y 0.001, puede afirmarse que el resultado obtenido de radón en aire es probablemente significativamente diferente del valor esperado, dado por el organismo organizador. En este caso, los electretes son de nuevo validados mediante nuevas exposiciones.

En el resto de las pruebas (de P2 a P7) el valor de u_{test} se sitúa por debajo de la condición $u_{test} < 1.64$, por lo que, con una probabilidad superior al 90% se puede afirmar que los resultados obtenidos no difieren significativamente del valor esperado.

4.5.2. Validación del detector Radon Scout Plus

En este caso, como no se ha participado en intercomparaciones mediante el detector Radon Scout Plus, su validación se lleva a cabo a partir de la comparación de las concentraciones medidas con otro detector en continuo, el Radon Scout PMT, comprado y calibrado de fábrica al inicio de esta Tesis Doctoral.

La validación se basa en la colocación de los dos detectores, en un mismo ambiente con una concentración de radón creciente. Los resultados experimentales se muestran en la Figura 4.14

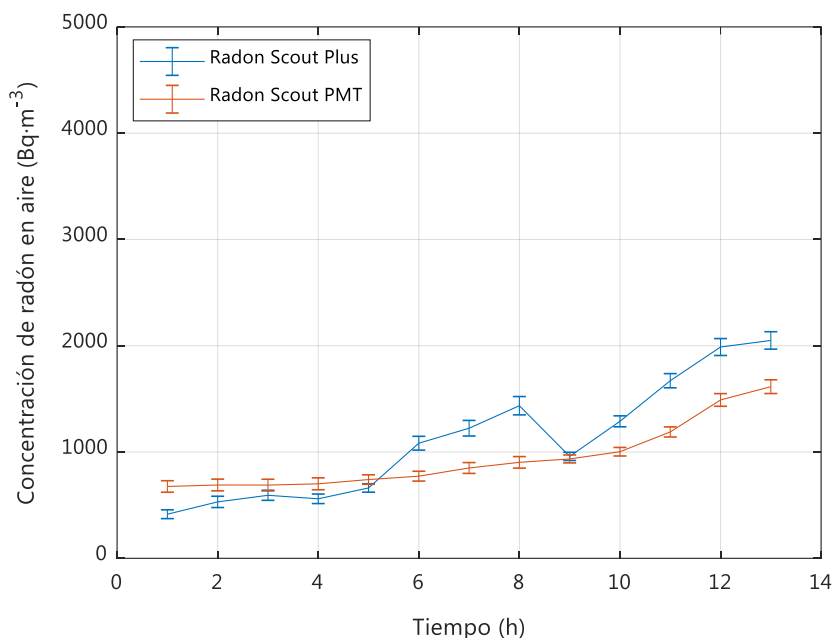


Figura 4.14. Valores experimentales de radón en aire obtenidos en las mediciones con los detectores Radon Scout Plus y Radon Scout PMT.

Para validar la equivalencia entre ambos métodos, se ha verificado el sesgo, tomando como referencia el valor del Radon Scout PMT, recién calibrado. Este sesgo, se sitúa por debajo del 30%, valor aceptable para concentraciones de radón en aire según criterios internos del laboratorio. El ensayo de validación se ha repetido periódicamente para comprobar si el sesgo se mantiene según los criterios establecidos en el laboratorio.

4.5.3. Validación del detector de centelleo Hidex 600 SL

La validación del detector se basa en la participación en dos ejercicios de intercomparación de radón en agua:

- Ejercicio de Intercomparación de radón en agua realizado por EUROFINS-IPROMA y LaRuc en 2021.
- Ejercicio de Intercomparación de radón en agua realizado por IPROMA y LaRuc en 2019.

Ejercicio de intercomparación año 2019

En este ejercicio de intercomparación se disponía de dos muestras de agua, una de origen continental (Muestra A) y otra preparada en el laboratorio con ^{226}Ra y acidificada con HNO_3 (Muestra B). La Universidad de Cantabria envió a cada participante una botella con 0.5 L de agua de la muestra A y otra de la B.

Según el informe final, presentado por LARUC, el tratamiento de los datos se ha realizado según la ISO 13528:2015, a partir de un algoritmo iterativo en el que los valores extremos de la población tienen un menor peso que en un tratamiento estadístico clásico. En este algoritmo se consideran todos los valores de todos los participantes en el ejercicio de intercomparación, excepto los valores incorrectos. Los valores extremos se reposicionan dentro de los intervalos de desviación aceptables y se obtienen estimadores robustos del valor consensado y de la desviación estándar.

El valor asignado para el parámetro de estudio es el *valor consensado*. El objetivo sigma es la desviación estándar arbitraria, según el conocimiento del método empleado y se fija en un 20%. La incertidumbre del valor consensado se calcula según la ISO 13528:2015 mediante la ecuación (4.6)

$$\mu_x = 1.25 \frac{S^*}{\sqrt{p}}, \quad (4.6)$$

siendo, S^* la desviación estándar robusta de los resultados y p el número de resultados.

La evaluación de los resultados se lleva a cabo según el valor asignado (valor de consenso) que cumple la condición de que su incertidumbre sea $\mu_x \leq 0.3 \sigma_p$. Por ello, se utiliza el criterio de Z (Z_{score}) para esta evaluación, según la ecuación (4.7)

$$Z_{score} = \frac{x - X}{\sigma_p}, \quad (4.7)$$

donde x es el resultado de cada participante, X el valor asignado y σ_p es el objetivo de la desviación estándar.

Los valores obtenidos de Z_{score} se interpretan según:

- $|Z_{score}| \leq 2$ indica un rendimiento satisfactorio y no genera una señal.
- $2 < |Z_{score}| < 3$ indica un rendimiento cuestionable y genera señal de atención.
- $|Z_{score}| > 3$ indica un desempeño insatisfactorio y genera una señal para la acción.

Los valores obtenidos de radón en agua para ambas muestras (A y B) se presentan en la Tabla 4.12.

Tabla 4.12. Resultados obtenidos en la intercomparación de radón en agua en las muestras A y B medida con Hidex 600 SL (2019).

Identificación de la muestra	Resultado e incertidumbre ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)	Número de medidas	Tiempo de medida (s)
Muestra A	259 ± 14	15	1800
Muestra B	83 ± 12	15	1800

Los parámetros del ejercicio de intercomparación, ofrecidos por LARUC se muestran en la Tabla 4.13.

Tabla 4.13. Resultados ofrecidos por la entidad organizadora de la intercomparación (2019).

Muestra	Valor asignado (X)	Desviación estándar robusta (σ_{ejer})	Sigma objetivo (σ_p)	Incertidumbre (μ_x)	Nº de resultados (p)
A	305	33	61	7	32
B	91	8	18	2	29

En la Tabla 4.14 se presentan los resultados obtenidos por el laboratorio en el ejercicio de intercomparación para el detector Hidex 600 SL.

Tabla 4.14. Resultados finales del ejercicio de intercomparación (2019).

	Muestra A	Muestra B
Resultado	259	83
Z_{score}	-0.76	-0.46

A partir de los resultados obtenidos, y según la interpretación del valor Z_{score} , inferior a 2 tanto para la muestra A como para la muestra B, se concluye que el rendimiento del detector de radón en agua Hidex 600 SL es satisfactorio y no requiere de ninguna acción para su ajuste y recalibración.

Ejercicio de intercomparación año 2021

En este ejercicio se ha seguido el mismo procedimiento que en el año 2019, considerando que únicamente había una botella con una muestra de agua continental a analizar. La Universidad de Cantabria envió una botella de cristal con 0.5 L de agua. Los resultados obtenidos por el laboratorio se muestran en la Tabla 4.15.

Tabla 4.15. Resultados obtenidos por el laboratorio en la intercomparación de radón en agua (2021).

Resultado e incertidumbre (Bq·L ⁻¹)	Nº medidas	Tiempo de medida (s)
385.07 ± 38	10	1800

Los parámetros del ejercicio de intercomparación, ofrecidos por LARUC se muestran en la Tabla 4.13.

Tabla 4.16. Resultados ofrecidos por la entidad organizadora de la intercomparación (2021).

Valor asignado (X)	Desviación estándar robusta (σ_{ejer})	Sigma objetivo (σ_p)	Incertidumbre (μ_x)	Nº resultados (p)
409.13	48.45	82	9	43

En la Tabla 4.17 se presentan los resultados obtenidos por el laboratorio en el ejercicio de intercomparación para el detector Hidex 600 SL.

Tabla 4.17. Resultados finales del ejercicio de intercomparación (2021).

Resultados de la intercomparación 2021	
Resultado	385.1
Z_{score}	-0.29

En esta segunda intercomparación, y según los resultados obtenidos, se valida que el rendimiento del detector de radón en agua sigue siendo satisfactorio y que no requiere de ninguna acción para su ajuste y recalibración.

4.5.4. Validación del RAD7-H20

La validación del detector en continuo RAD7-H20 utilizado en las medidas de campo de radón en agua se ha basado en la participación del ejercicio de intercomparación organizado por IPROMA y LaRuc en 2019.

Las condiciones de ensayo son las mismas que las especificadas en el apartado anterior pero únicamente se analizó la botella de 0.5 L de agua continental (Muestra A).

El tratamiento de datos sigue también la ISO 13528:2015 y, de nuevo, analiza el valor obtenido de la Z_{score} según la ecuación (4.7).

La concentración de radón en agua en las muestras (A), medida con el detector RAD7-H20 se presentan en la Tabla 4.18.

Tabla 4.18. Resultados obtenidos por el laboratorio en la intercomparación de radón en agua en las muestras A y B, medida con RAD7-H20 (2019).

Identificación de la muestra	Resultado e incertidumbre ($Bq \cdot L^{-1}$)	Nº medidas	Tiempo de medida (s)
Muestra A	246 ± 20	3	1500

Los parámetros del ejercicio de intercomparación de la Muestra A son los que se han presentado en la Tabla 4.13 y se comparan con los resultados obtenidos en el ejercicio de intercomparación, que se muestran en la siguiente Tabla 4.19.

Tabla 4.19. Resultados finales del ejercicio de intercomparación, mediante RAD7-H20 (2019).

Resultado de la intercomparación 2019	
Resultado	246
Z_{score}	-0.97

El resultado de Z_{score} , inferior a 2 en valor absoluto, indica que el rendimiento también es satisfactorio y que no se requiere acción de corrección.

CAPÍTULO 5

ENSAYOS PRELIMINARES

En este capítulo se detalla el punto de partida de la investigación: la problemática de la transferencia de radón agua-aire y la puesta a punto del montaje experimental que permite analizar este proceso a escala laboratorio.

5.1. Introducción sobre los estudios preliminares

En este capítulo se describe el punto de partida de esta Tesis Doctoral, la problemática frente al radón en la Marjal de Peñíscola. Se optó por analizar los niveles en agua siguiendo con investigaciones previas en las que ya se habían observado variaciones significativas de concentración de radón exhalado a lo largo de este humedal (Noverques, 2017).

De acuerdo con la clasificación de municipios en función del potencial de radón publicado en el CTE (Documento Básico HS, CTE, 2020), Peñíscola no se encuentra entre los municipios con riesgo asociado al radón.

Dado que parte del grupo de investigación ya estaba realizando campañas de medida de radón en aire en una *Estación de Pretratamiento de Aguas Residuales* (EPAR) cercana, se favoreció la medición de radón, tanto en agua como en aire, en esa misma instalación, un espacio cerrado y aislado del exterior con poca ventilación.

Los resultados hallados no permitían determinar una correlación entre concentración en agua, cuyos valores se situaban muy por debajo del límite legislativo, y la concentración en aire, cuyos niveles sí excedían la normativa vigente.

La elevada variabilidad del radón (estacional y diaria), y su dificultad para ser analizado de forma simultánea y continua (en agua y aire), así como las dimensiones de la EPAR, entre otros factores, propiciaron el traslado de la

investigación de la transferencia del gas radón a escala laboratorio. El principal objetivo era reproducir situaciones en las que el radón se difundía de un medio a otro y que podrían tener lugar en una instalación (depuradoras de agua, industria cerámica, etc.) o en una vivienda real. Se plantearon diferentes condiciones de ensayo como la acumulación de radón en aire, la acumulación en agua, la transferencia agua-aire, etc. El siguiente paso era, por tanto, la puesta a punto de los ensayos a escala laboratorio.

Para ello, era necesaria tanto la selección de las fuentes generadoras de radón, para obtener su acumulación en aire y en agua, como la selección del equipo experimental en el que se llevarían a cabo los ensayos, y ciertos ensayos previos para el inicio de cada experimento. En estas actividades se incluye:

- Cálculo de las actividades de las fuentes y selección de la utilizada en la investigación.
- Diseño del equipo experimental y determinación de su hermeticidad para evitar fugas de radón.
- Análisis de la homogeneidad del radón en agua en el interior del tanque para los ensayos en el medio acuoso.
- Determinación del método más adecuado para la extracción de muestras de agua.

A continuación, en la Figura 5.1 se muestra la configuración de los ensayos preliminares llevados a cabo en esta investigación. En cada casilla se incluye el número del índice de cada apartado.

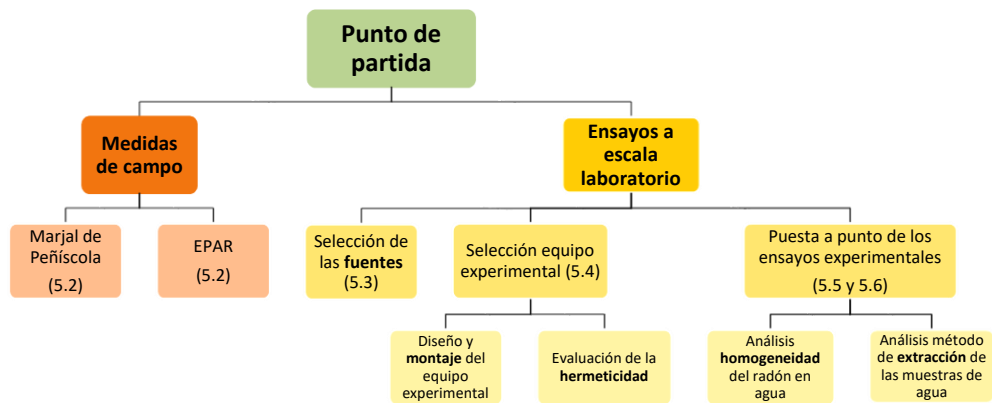
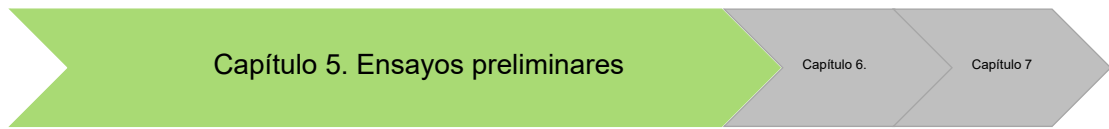


Figura 5.1. Mapa conceptual de los ensayos preliminares llevados a cabo.

En los siguientes apartados se describe el procedimiento experimental llevado a cabo en cada ensayo, los resultados obtenidos y las conclusiones a las que se ha llegado.

5.2. Análisis de radón en la Marjal de Peñíscola

Las primeras medidas de campo se llevaron a cabo entre finales del año 2016 y principios del 2017 en la Marjal de Peñíscola. Situada en la costa mediterránea y a apenas 150 km de la ciudad de València, es uno de los humedales protegidos de la Comunitat Valenciana, considerado Lugar de Interés Comunitario (LIC) desde el 10 de julio de 2001. Catalogado como microreserva de flora del municipio, es una de las zonas donde confluyen aguas de diversa procedencia.

En la Figura 5.2 se muestra la ubicación de la Marjal de Peñíscola (Noverques, 2017):

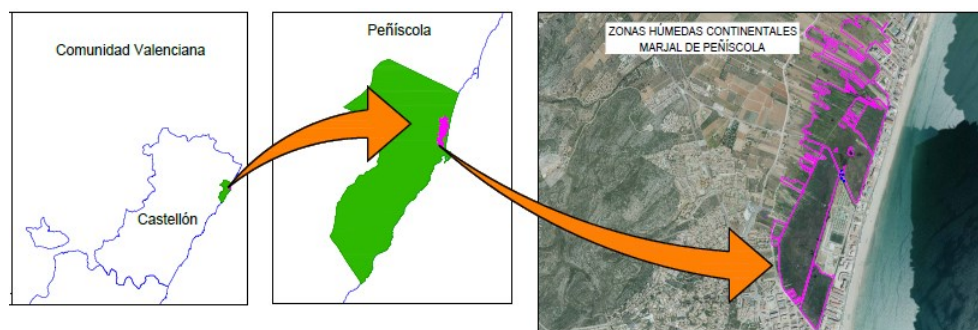


Figura 5.2. Geolocalización de la Marjal de Peñíscola.

Estudios previos llevaron a cabo muestreos en diferentes puntos del humedal y en instalaciones cercanas para determinar las concentraciones de radón tanto en exteriores como en interiores. Se detectaron valores considerablemente altos al aire libre, superiores a los $50 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, asociados a la concentración de ^{226}Ra en el suelo de la Marjal, así como al contenido de ^{222}Rn en el agua salobre que circula por la zona, ligeramente por encima de lo que se considera una muestra libre de radón. De entre las instalaciones analizadas en este estudio, destacaba la Estación de Pretratamiento de Aguas Residuales (EPAR) de la localidad.

La concentración de radón en aire en interiores medida con detectores pasivos (Makrofol) variaba entre los 341 ± 30 y los $2729 \pm 400 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, mientras que mediante el detector en continuo RAD7, con medidas de corto plazo, se llegó a alcanzar los $63719 \pm 11928 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ (Cherta et al., 2009). Sin embargo, en medidas de larga duración, el valor promedio era de $2845 \pm 243 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ (Cherta et al., 2009).

Años más tarde, se siguió midiendo la concentración de radón en aire en el interior de la EPAR, siendo superior al límite legislativo. Una mejora en el sistema de ventilación permitió la disminución de la exposición ocupacional de las diferentes salas de la planta en casi un 80% (Juste et al., 2015).

Nuevas investigaciones (Noverques, 2017) se volvieron a centrar en el muestreo de los niveles de radón en el suelo de la Marjal, colindante con la zona acuática. En algunos puntos, la concentración de gas de suelo medida oscilaba cerca de los 9000 Bq·m⁻³. Con el objetivo de conocer la procedencia de este gas, y partiendo de una exhaustiva revisión bibliográfica de la zona, se seleccionaron diferentes puntos de muestreo para la determinación de radón en agua.

El objetivo de estos ensayos era medir y analizar la concentración de radón en agua en diferentes puntos de la Marjal, y analizar los niveles de radón en agua y aire en el interior de la estación de Pretratamiento de Aguas Residuales (EPAR).

Las mediciones *in situ* de la Marjal se llevaron a cabo mediante dos sistemas de detección: RAD7-H₂O y electretes, con la finalidad de comparar resultados y seleccionar, para medidas de campo, el equipo más apropiado.

5.2.1. Procedimiento experimental

En estos ensayos, la selección de los métodos de medición del radón y sus descendientes depende principalmente de la facilidad de transporte de los detectores, debido a la accesibilidad de la zona y de la distancia al laboratorio, así como de la duración de los tiempos de medida que requiere cada uno. Para las mediciones de campo realizadas *in situ*, las mediciones de radón en agua se realizan mediante el detector RAD7-H₂O y electretes. Los ensayos de radón en el interior de la planta de pretratamiento se han llevado a cabo mediante los mismos sistemas de detección.

Medidas in situ de radón en agua en la Marjal de Peñíscola

De entre la variedad de protocolos de medida que ofrece el detector RAD7-H₂O y, según investigaciones previas que mostraban valores de radón en agua por encima de los 100 Bq·L⁻¹ en la Marjal, se seleccionaron los viales de 40 mL y el protocolo *Wat40*.

Cada vial se introduce en el agua hasta su enrase, evitando la formación de burbujas. Se debe esperar 3 horas antes del inicio de los ensayos, tiempo suficiente para que el radón alcance el equilibrio con sus descendientes. Cada vial se conecta al circuito de detección y el monitor bombea la muestra de agua a través del circuito cerrado. Esto permite, mediante el burbujeo, que el radón

se transfiera al aire para su transporte y detección en su interior. La humedad del aire se elimina mediante el tubo de secado y las pequeñas partículas generadas se depositan sobre el filtro de entrada. El tiempo de medida se fija en 30 minutos para cada muestra. Antes y después de cada ensayo debe realizarse una purga del sistema para eliminar los restos de aire con radón del interior del sistema.

Las mediciones llevadas a cabo mediante los electretes (E-PERM System) consisten en introducir el vial de muestreo (67 mL) en agua hasta su enrase, evitando de nuevo la formación de burbujas que facilitarían la liberación del radón. En este caso, las muestras se devuelven al laboratorio y, a las 3 horas, se inician los ensayos, una vez alcanzado el equilibrio entre el radón y sus descendientes. El vial se deposita en el interior de la jarra de cristal, impermeable al radón y cuyo cierre garantiza su hermeticidad. Tal y como se ha detallado en el *Capítulo 5: Instrumentación*, el detector queda suspendido en el interior de la jarra. La diferencia de voltaje durante la exposición determinará la concentración de radón en agua. El tiempo de muestreo utilizando los electretes es de 3 días.

Con el objetivo de disponer de una distribución geográfica del radón a lo largo de la Marjal, se seleccionaron 9 puntos de muestreo diferentes, distribuidos en menos de 400 metros de longitud, tal y como se muestra en la Figura 5.3.

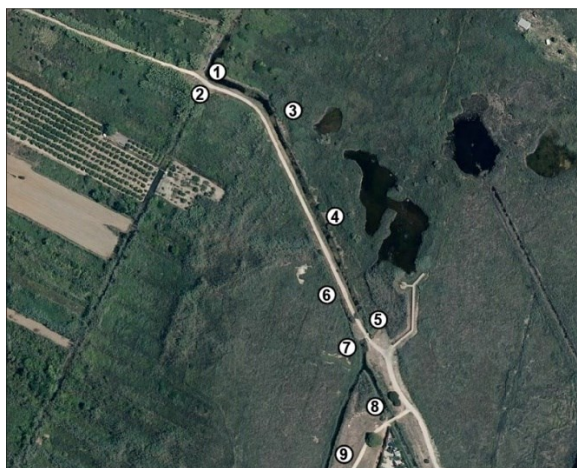


Figura 5.3. Ubicación de los puntos de muestreo en la Marjal de Peñíscola.

En los nueve puntos se han tomado y analizado las muestras de agua mediante el detector RAD7-H₂O. Tres de ellos (puntos 5, 7 y 8), se corresponden con las ubicaciones donde mayores concentraciones de radón exhalado y en suelo se habían medido con anterioridad (Noverques, 2017).

El resto de los puntos se han seleccionado según la orografía y su accesibilidad para la medición. En los puntos 4 y 8 la concentración de radón en agua se ha medido también con electretes, en un mismo día y condiciones de ensayo, para comparar ambas metodologías. No se han seleccionado más puntos de muestreo para la comparación debido a que los electretes requieren un tiempo de medida mayor (3 días) y no es técnicamente viable.

Medidas in situ de radón en agua y en aire en la planta de pretratamiento de aguas residuales

Los ensayos de radón en agua se han llevado a cabo mediante el sistema de detección RAD7-H₂O, siguiendo el mismo protocolo que en las medidas en la Marjal: el vial se introduce en el agua de la tubería de entrada a la EPAR que circula por el interior de la planta, evitando burbujeo, y es analizado a través del circuito cerrado que conforma el detector. En este caso, el protocolo de medida es el Wat250, y el vial, de 250 mL, ya que se esperan valores de concentración en agua inferiores. Los tiempos de ensayo son también de 30 minutos. El periodo de muestreo se sitúa entre los meses de febrero a abril de 2018.

La concentración de radón en aire se ha determinado mediante la instalación del sistema de detección E-PERM, los electretes. En este caso, el tiempo de exposición es de 3 meses, según recomendaciones del CSN. Tal y como se detalla en el *Capítulo 5: Instrumentación*, los electretes se enroscan a la cámara y, por parejas, se introducen en una caja que permite la difusión del radón en su interior. La diferencia de voltaje antes y después de la exposición determinará el nivel de radón en aire.

5.2.2. Resultados

En este apartado se muestran los resultados obtenidos de la concentración de radón en agua en la Marjal de Peñíscola, la comparación entre los dos métodos empleados, así como los niveles de radón en agua y en aire en el interior de la planta de pretratamiento de aguas residuales.

Concentración de radón en agua en la Marjal de Peñíscola

Los niveles de radón en agua medidos en los 9 puntos de la Marjal de Peñíscola se muestran en la Tabla 5.1. Con el objetivo de comparar las dos metodologías para la medición de radón en agua, se han analizado las muestras en los puntos 4 y 8 también con el sistema de detección E-PERM. Se ha calculado el sesgo asociado a ambas metodologías, tomando como referencia el RAD7, según la ecuación (5.1)

$$\text{Sesgo}_{\text{radón Marjal}} (\%) = \frac{C_{Rn\text{electretes}} - C_{RnRAD7}}{C_{RnRAD7}} 100, \quad (5.1)$$

siendo, C_{RnRAD7} la concentración de radón medida con el RAD7-H2O y $C_{Rn\text{electretes}}$ la obtenida con el sistema de electretes E-PERM.

Tabla 5.1. Concentración de radón en agua en la Marjal de Peñíscola.

Punto de muestreo	Concentración (Bq·L ⁻¹) (RAD7-H2O)	Concentración (Bq·L ⁻¹) (E-PERM)	Sesgo (%)
1	102 ± 12.1	-	
2	57 ± 3.8	-	
3	107 ± 10.2	-	
4	121 ± 8.4	138.70 ± 10.3	14.63 %
5	387 ± 27.3	-	
6	120 ± 5.7	-	
7	121 ± 8.4	-	
8	228 ± 13.0	217.04 ± 12.6	4.80 %
9	179 ± 13.0	-	

Según los resultados obtenidos, la concentración de radón en agua medida con el detector RAD7-H₂O oscila entre 57 ± 3.8 Bq·L⁻¹ y 387 ± 27.3 Bq·L⁻¹. Destacan los puntos 5 y 8, por presentar niveles superiores, y el punto 2 por ser el valor más bajo, casi la mitad del resto de puntos.

Los puntos 5 y 8 presentan valores superiores de concentración de radón en agua, del mismo orden de magnitud que investigaciones previas, cuya concentración oscila entre los 100 y los 200 Bq·L⁻¹ (Rodellas, 2008) y a su vez, en los mismos puntos en los que el terreno presentaba mayor tasa de exhalación (Noverques, 2017).

El punto 7 no sigue la misma tendencia y presenta valores inferiores a lo esperado. Se considera que esta disminución en la concentración se debió a la limpieza de la zona en el momento del muestreo, que habría agitado el agua y los sedimentos de la zona. Los resultados obtenidos muestran una elevada

variabilidad para distancias cortas (inferiores a los 100 metros entre dos puntos de muestreo).

El punto 2 muestra el valor más bajo de concentración de radón en agua, debido a la poca cantidad que circula por esa zona. La poca profundidad y el volumen de agua facilitan la liberación del radón a la atmosfera. El resto de los puntos de muestreo no pueden ser comparados con otros estudios porque no hay valores de referencia. Sin embargo, se observa una disminución de la concentración respecto al punto anterior en el punto 9, donde se produce un ensanchamiento de la marisma y una confluencia de agua del punto 8 y de agua estanca. Esto provoca una dilución del agua y un ligero descenso del nivel de radón.

En los puntos 4 y 8, tal y como se observa en la anterior Tabla 5.1, la concentración de radón en agua es de 121 ± 8.4 y 228 ± 13.0 Bq·L⁻¹, medida con el detector RAD7-H₂O, frente a los 138.70 ± 10.3 y 217.04 ± 12.6 Bq·L⁻¹ obtenidos por el sistema E-PERM. El sesgo asociado a la medida de radón en agua mediante el detector RAD7-H₂O y los electretes se fija en un 14.63% en el punto 4 y 4.80% en el punto de muestreo 8. Se constata una mayor diferencia de resultados, y por tanto un mayor error, para concentraciones inferiores de radón en agua. Estos valores pueden deberse a la sensibilidad de cada equipo que, pese a detectar en rangos inferiores según las especificaciones de cada fabricante, miden con mayor precisión cuanto más radón presenta una muestra de agua. En ambos casos, el error no supera el 15 %, valor de precisión considerado como aceptable según criterios internos del laboratorio.

La similitud de los resultados obtenidos y su error asociado confiere una mayor fiabilidad de los métodos, lo que permite considerar la equivalencia de su utilización en las medidas de campo.

También se han comparado los resultados con los límites establecidos en la legislación española, fijados entre 500 y 1000 Bq·L⁻¹(Real Decreto 314/2016). Cabe señalar que, si bien la Marjal de Peñíscola muestra valores anormalmente elevados en comparación con otras localidades y con las viviendas (concentraciones de radón en agua < 1 Bq·L⁻¹), en ninguno de los puntos muestreados se supera el valor máximo marcado por la legislación.

Concentración de radón en agua y en aire en la planta de pretratamiento de aguas residuales

Adicionalmente, se ha realizado un análisis de los resultados de las concentraciones de radón en agua y en aire en la EPAR, extraídos de informes anuales previos (Juste et al., 2015). Las mediciones en agua fueron realizadas mediante el RAD7-H₂O a la entrada de la estación, y las mediciones de aire mediante electretes E-PERM (con cámaras SLT y LLT) en diferentes estancias, siguiendo con las directrices establecidas por el CSN. Estos valores se muestran en la Tabla 5.2.

Tabla 5.2. Resultados de informes anuales de las medidas de radón en la planta de pretratamiento de aguas residuales.

Periodo exposición	Concentración en agua (Bq·L ⁻¹)	Concentración en aire (Bq·m ⁻³)
2013 Febrero – Abril	27 ± 1.9	4702 ± 249
2014 Marzo – Junio	41.5 ± 2.8	677 ± 34
2015 Febrero – Abril	34 ± 2.2	634.3 ± 43

Como se observa en la Tabla 5.2, los valores de radón en agua oscilan entre 27 ± 1.9 y 41.5 ± 2.8 Bq·L⁻¹, muy por debajo de los medidos en la Marjal de Peñíscola, mientras que la concentración de radón en el aire supera el límite de exposición en cada medida. La disminución en aire de 2014 frente a la medida en 2013 es debida a la instalación de sistemas de ventilación forzada que renuevan el aire 10 veces por hora, eliminando así parte del radón presente.

Se observa que, para espacios cerrados con poca ventilación, como sucede en esta planta, incluso niveles bajos, muy inferiores al límite legislativo (1000 Bq·L⁻¹) de radón en agua suponen un incremento notable en la concentración del gas en el aire. El agua que entra en la depuradora está en continuo movimiento y agitación, facilitando la liberación de gas al aire. Este fenómeno podría compararse con el muestreo realizado por el RAD7-H₂O: la muestra de agua, agitada y burbujeada libera el radón que es transferido al aire. El mismo proceso sucede en las viviendas, donde existe un mayor riesgo asociado a la inhalación de radón cuando el agua está en movimiento (en la ducha o cocina cuando se friegan los platos), que por la ingesta de esa misma agua (OMS, 2021).

Estos ensayos evidencian que existe una relación entre la concentración de radón en aire y la concentración de radón en agua en un emplazamiento cerrado. Se recalca la importancia de disminuir los niveles de radón en agua a valores prácticamente nulos para evitar así su liberación al aire. Actualmente, no hay una solución clara para disminuir la concentración de radón en agua. Se propone su tratamiento para la eliminación del radón en los puntos de entrada de agua mediante gasificación (aireación y/o adsorción y decaimiento con carbón activo). Sin embargo, las técnicas más avanzadas y comunes son las de mitigación de la concentración de radón en aire, en interiores de viviendas y lugares de trabajo.

Para disponer de un orden de magnitud de la cantidad de radón que se puede encontrar en un espacio considerado libre de radón, se realizó la medición de radón en agua y aire en una vivienda ubicada en la localidad de Catadau, en la provincia de Valencia. Este municipio se encuentra en zona sin clasificar según el mapa del CTE. Los resultados obtenidos se muestran en la Tabla 5.3.

Tabla 5.3. Niveles de radón en agua en una vivienda.

Periodo de exposición	Concentración promedio de radón en agua con RAD7-H2O (Bq·L ⁻¹)	Concentración en aire, con electretes LLT E-PERM (Bq·m ⁻³)
2018 Febrero - Abril	0.149 ± 0.1	27 ± 4

Tal y como se muestra en la tabla anterior, la concentración de radón en agua es de 0.149 ± 0.1 Bq·L⁻¹ y 27 ± 4 Bq·m⁻³ en aire. En ningún caso se excede el límite legislativo y los valores obtenidos son muy inferiores a los analizados en la planta de pretratamiento de aguas residuales.

5.2.3. Discusión de resultados

Con el objetivo de caracterizar la zona de la Marjal de Peñíscola, donde se considera que podría existir riesgo radiológico derivado de la inhalación de gas radón, se tomaron muestras de agua en 9 puntos, ubicados a lo largo de la misma y en la zona más accesible al público.

Se ha observado que la concentración de radón en agua oscila desde los 57 ± 3.8 Bq·L⁻¹ hasta los 387 ± 27.3 Bq·L⁻¹, lo que verifica la elevada variabilidad del gas.

Algunos de los puntos muestreados presentan niveles que se encuentran en el mismo rango que los analizados por otros grupos de investigación previamente. En ningún punto se excede el límite legislativo para concentraciones de radón en agua potable.

Asimismo, analizando y comparando dos metodologías diferentes para la medición de radón en agua *in situ*: RAD7-H₂O y electretes E-PERM se observa que el sesgo calculado está por debajo del 15%, valor fijado como aceptable en el laboratorio.

La concentración de radón en agua dentro de la EPAR, aun siendo baja, podría ser la causa de un aumento en la concentración de radón en el aire. El agua agitada favorece la liberación del radón hasta el aire, donde se acumula debido a la poca ventilación de la estación. Estos ensayos se trasladan a escala laboratorio para validar la posible correlación entre ambos medios.

En esta investigación se constata la necesidad de analizar el proceso de transferencia de radón de agua a aire dada la importancia que tiene la liberación del gas en su acumulación en espacios cerrados o con poca ventilación. Se define así el punto de partida del desarrollo experimental de esta tesis.

5.3. Selección de las fuentes generadoras de radón

En los ensayos llevados a cabo a escala laboratorio se ha utilizado como fuentes generadoras de radón tres piedras pechblenda de diferentes actividades. Se trata de una variedad de uraninita, un mineral radiactivo rico en uranio que se forma en pegmatitas graníticas y vetas hidrotermales a temperaturas medias (GeologíaWeb, 2021). Como producto de la desintegración radiactiva del uranio, contiene radio, cuyo periodo de semidesintegración es de 1602 años. Este a su vez, se desintegra en radón y, por tanto, es considerado como una fuente natural de generación de gas radón. En la Figura 6.5. se muestra una de las fuentes utilizadas.



Figura 5.4. Ejemplo de una de las piedras pechblendas utilizadas.

La determinación de la actividad de la fuente se ha llevado a cabo mediante un detector de espectrometría gamma, detector de germanio. Este equipo requiere previamente de una calibración en energías, una identificación de los diferentes radionucleidos del espectro gamma obtenido, determinando la energía de cada fotopico. A partir de fuentes patrón, se establece la relación entre la energía que emite cada radionucleido (^{226}Ra ; ^{60}Co , etc.) con el canal del espectro. Una vez calibrado, se introduce la muestra en el detector y se procede a su medición en una placa petri de geometría conocida. El tiempo de ensayo para la caracterización es de 10 minutos. El espectro obtenido se muestra en la Figura 5.5.

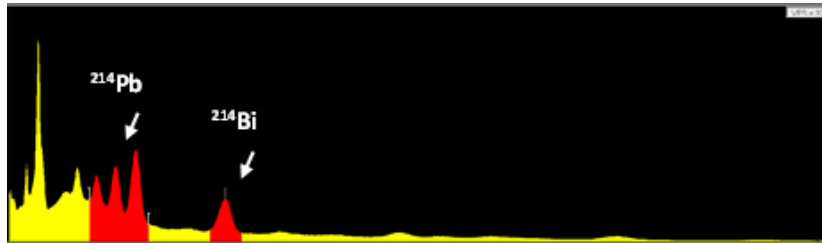


Figura 5.5. Espectro de la muestra de la fuente de radón.

En el espectro anterior se observan los tres picos del radionucleido ^{214}Pb en un rango de energías desde 220 hasta 396 keV, y el pico del ^{214}Bi , desde los 565 hasta los 655 keV.

La actividad de ^{214}Pb de esta muestra, siguiendo la calibración en eficiencias, es de $93 \text{ kBq} \cdot \text{kg}^{-1}$. En la Tabla 5.4 se muestra la codificación de cada fuente, su peso en kg y la actividad de ^{222}Rn , en equilibrio con su descendiente ^{214}Pb determinado por espectrometría.

Tabla 5.4. Caracterización de las tres fuentes generadoras de radón.

Fuente	Peso (kg)	Actividad ^{222}Rn
Fuente 1 (F1)	$19.756 \cdot 10^{-3}$	$1.84 \pm 0.12 \text{ kBq}$
Fuente 2 (F2)	$45.939 \cdot 10^{-3}$	$4.27 \pm 0.27 \text{ kBq}$
Fuente 3 (F3)	$489.900 \cdot 10^{-3}$	$45.10 \pm 2.84 \text{ kBq}$

Estas tres fuentes se almacenan en la Instalación Radiactiva única (IRA-UPV), en las dependencias del Departamento de Ingeniería Química y Nuclear de la ETSII.

La actividad de cada fuente permite disponer del orden de magnitud para seleccionar de forma eficiente en qué tipo de ensayos se utilizará cada una de ellas según las necesidades del laboratorio, los tiempos de ensayos necesarios o el tipo de muestreo realizado.

Las tres fuentes, (F1, F2 y F3) se han utilizado en el análisis de la transferencia de radón desde la misma fuente hasta el aire y su acumulación en el interior del tanque experimental. Por cuestiones operativas y organizativas del laboratorio, se ha determinado la homogeneidad del radón en agua mediante la fuente F2, de actividad intermedia; y para la validación de los métodos de extracción, se ha ensayado con la fuente F3, de mayor actividad, ya que se requería de un enriquecimiento mayor del agua.

Posteriormente, para los ensayos agua-aire, se ha seleccionado una única fuente, de actividad intermedia, Fuente 2 (F2), que permite alcanzar concentraciones elevadas para diferentes periodos de tiempo sin llegar al límite de detección de los equipos de análisis de radón en aire.

5.3.1. Discusión de resultados

En este apartado se ha determinado la actividad de tres fuentes generadoras de radón, tres piedras pechblendas de origen natural. La validación del método de extracción se ha llevado a cabo con la fuente de mayor actividad, la F3, que permite un enriquecimiento del agua más rápido. En los ensayos de radón en aire se han utilizado las tres fuentes para validar el comportamiento del gas independientemente de la actividad de la fuente que lo genera. En las medidas llevadas a cabo cuando coexisten dos fases (agua y aire) se ha utilizado únicamente la fuente F2.

5.4. Selección del equipo experimental. Diseño y montaje del equipo experimental y evaluación de la hermeticidad

La selección del material para el diseño del equipo experimental se ha basado en la revisión bibliográfica de diferentes estudios que analizan la eficacia de materiales aislantes. En muchos casos, son utilizados para limitar y disminuir la entrada de gas radón en viviendas y edificios.

Algunos ejemplos empleados para la protección de la inmisión del radón son las láminas de polietileno, láminas de PVC, láminas de caucho o láminas bituminosas. En general, su combinación, la adición de diferentes capas y el aumento del grosor permiten mejorar las características necesarias de impermeabilidad y estanqueidad requeridas (Vázquez et al., CTI, 2010).

Según el Código Técnico de la Edificación, para que una barrera sea considerada como válida el coeficiente de difusión al radón debe ser inferior a $10^{-11} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ y su espesor, de 2 mm (Documento Básico HS, CTE, 2019). Este coeficiente determina la facilidad con la que el gas radón se desplaza a través de los materiales y puede obtenerse experimentalmente a partir de los diferentes procedimientos descritos en la ISO 11665-13:2017 o en la ISO 11665-12:2018.

La determinación de los coeficientes de difusión de diversos materiales muestra grandes variaciones de unos a otros: desde los $10^{-13} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ hasta los $10^{-10} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ para membranas bituminosas de asfalto oxidado (BM); láminas de polietileno de alta y baja densidad (HDPE y LDPE); láminas flexibles de polietileno clorado (PCV) e incluso revestimiento de asfalto modificado (MAC). De entre todos ellos, se ha verificado que uno de los que presenta un coeficiente de difusión de radón menor son las láminas de polietileno (*High Density Polyethylene*), en un rango que varía entre $5 \cdot 10^{-12}$ y $10 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ (Jiránek et al., 2001). Se ha demostrado que disponer de este parámetro es también una herramienta para la verificación de la hermeticidad y estanqueidad de las juntas (tuberías, suelos, etc.) (Jiránek et al., 2011).

Estos estudios constatan la necesidad de la adecuada y óptima selección del material utilizado para el equipo experimental donde se realizarán los ensayos a escala laboratorio, evitando así fugas del sistema y pérdidas del radón en la parte experimental.

Por ello, para la ejecución de esta Tesis Doctoral, el equipo empleado es un tanque de polietileno de alta densidad (HDPE), cuya descripción se muestra a continuación.

5.4.1. Descripción general del montaje experimental inicial

Con el objetivo de simular los procesos que podrían llevarse a cabo en diferentes procesos industriales que trabajan con elevadas cantidades de agua, en muchos casos en agitación, se seleccionaron dos contenedores de polietileno de alta densidad (HDPE): uno de 120 L (bidón grande, BG) y otro de 30 L (bidón pequeño, BP).

Ambos depósitos son impermeables al radón y con las dimensiones adecuadas como para trabajar con diferentes volúmenes de agua dejando espacio libre suficiente para introducir los detectores de radón en aire.

En la Figura 5.6 se muestran los dos tanques utilizados.

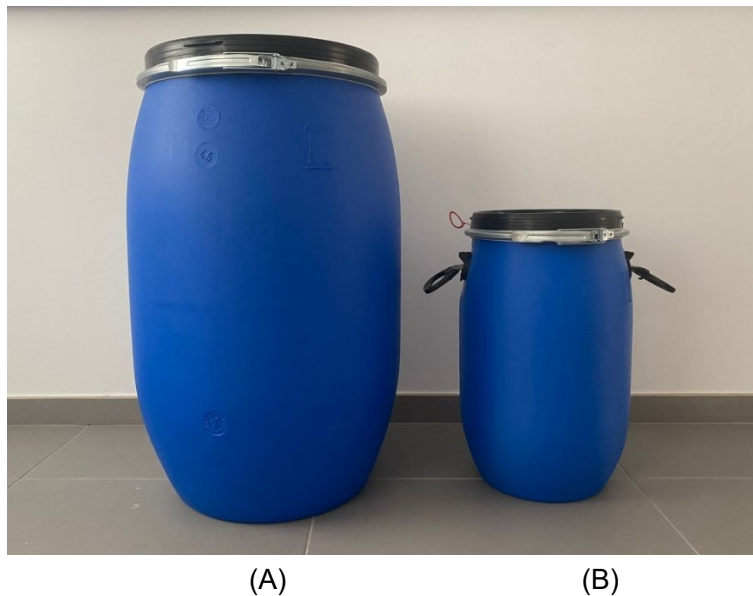


Figura 5.6. Imagen de los dos bidones en los que se realizan los ensayos. (A) Bidón BG, de 120 L. (B) Bidón BP, de 30 L.

Las dimensiones de cada uno se muestran en la Figura 5.7.

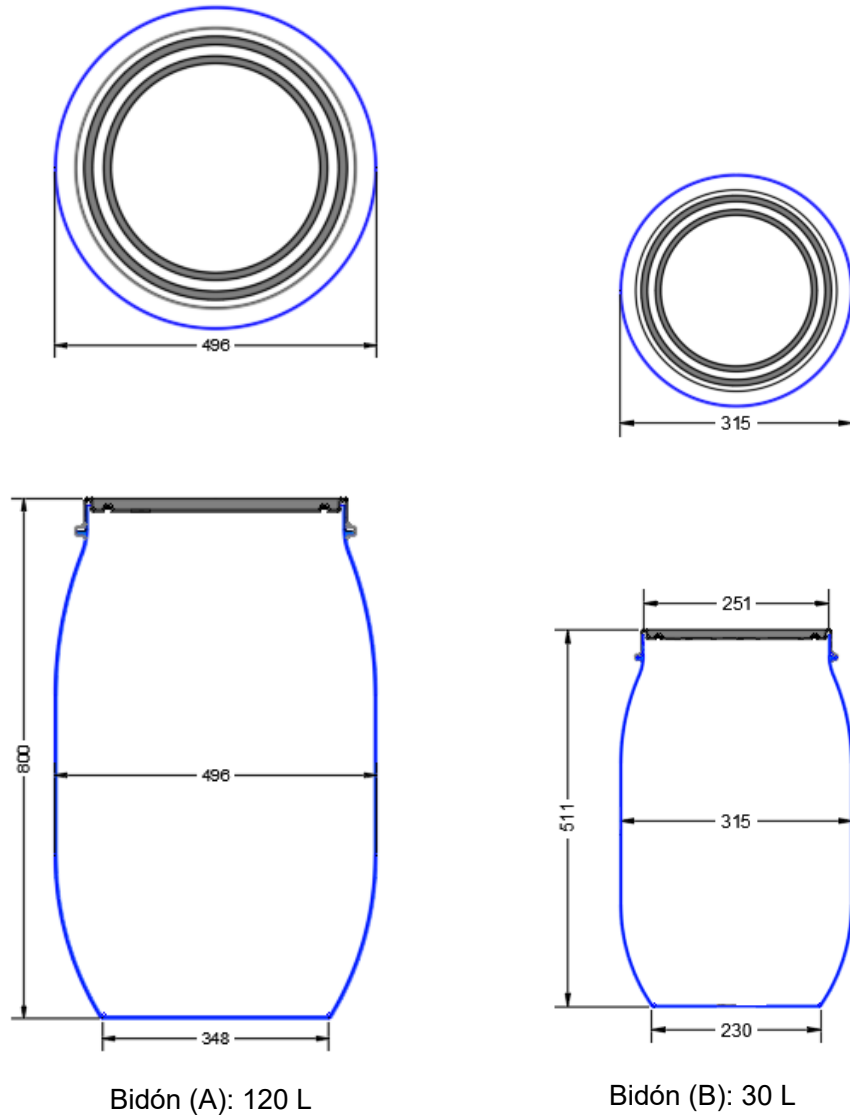


Figura 5.7. Dimensiones (en mm) de los dos bidones de HPDE.

El bidón BG, de 120 L de capacidad, mide 80 cm de altura y 34.8 cm de base. La zona central se ensancha ligeramente hasta los 49.6 cm. Este tanque se utiliza para analizar la acumulación de radón en aire cuando únicamente está la piedra en su interior, así como para el estudio de los procesos de transferencia de radón agua-aire.

El segundo equipo experimental, el bidón pequeño, BP, tiene una capacidad de 30 L. Su altura es de 51.1 cm, su base es de 23 cm de diámetro y en la parte central se produce un ensanchamiento del tanque, alcanzando un diámetro de 31.5 cm. Este bidón se ha utilizado únicamente para determinar la acumulación de radón en aire.

Para verificar la hermeticidad del cierre y estanqueidad del sistema, dado que se necesita que el intercambio de aire entre el exterior y el interior sea mínimo, se han aplicado dos procedimientos de validación de su aislamiento:

- **Método 1:** Instalación de detectores de E-PERM, electretes, alrededor del bidón para determinar la concentración de radón en sus proximidades, analizando si se ha producido un incremento de los niveles de radón en aire durante periodos de tres meses en los que se llevan a cabo distintos ensayos experimentales.
- **Método 2:** Determinación de la constante efectiva. En este caso, se introduce una de las fuentes en el recipiente y se cierra. Se monitorea la acumulación de radón en aire hasta alcanzar una concentración alta. Se retira la fuente y se monitoriza la disminución de la concentración en el interior del tanque. Los resultados obtenidos se ajustan a la ley de decaimiento de la ecuación (5.2) que permite determinar el valor de la constante efectiva λ_{ef} (ISO 11665-13, 2017)

$$C_{Rn}(t) = C_o e^{-\lambda_{ef} t}, \quad (5.2)$$

donde C_o es la concentración de radón en aire medida ($Bq \cdot m^{-3}$), λ_{ef} la constante efectiva (h^{-1}) y t el tiempo de exposición (h). Se define la constante λ_{ef} como

$$\lambda_{ef} = \lambda + \lambda_p, \quad (5.3)$$

siendo λ es la constante de desintegración del radón (h^{-1}), y λ_p la constante de pérdidas del sistema.

Según la ISO 11665-13 (2017), para garantizar la estanqueidad del recipiente, las pérdidas del sistema deben ser inferiores a $0.00378 h^{-1}$, la mitad de la constante de desintegración del radón ($\lambda_{Rn} = 0.00756 h^{-1}$)

A continuación, se presentan los resultados obtenidos para la evaluación de la hermeticidad mediante ambos métodos.

Aplicación del método 1: instalación de detectores

Se ha determinado el nivel de fondo del laboratorio mediante la instalación de detectores E-PERM alrededor de cada equipo en dos periodos de tres meses, en los que se han llevado a cabo diferentes ensayos experimentales. Estos detectores permiten medir el incremento de la concentración de radón en caso de haber fugas en los depósitos mientras se realizan los ensayos con las fuentes. Los resultados se muestran en la Tabla 5.5.

Tabla 5.5. Nivel de radón en aire de fondo en el laboratorio durante la realización de los ensayos experimentales.

Detector Periodo 1	Concentración radón en aire (Bq·m ⁻³)	Detector Periodo 2	Concentración de radón en aire (Bq·m ⁻³)
SST1	56 ± 7	SST5	58 ± 9
SST2	44 ± 6	SST6	55 ± 6
SST3	56 ± 11	SST7	43 ± 5
SST4	63 ± 7	SST8	55 ± 6

Se observa que la concentración de radón en aire medida cuando se llevan a cabo los diferentes ensayos experimentales entre los 43 ± 5 y 63 ± 7 Bq·m⁻³ en los dos periodos de tiempo muestreados.

Sabiendo que la concentración en aire promedio del laboratorio en condiciones normales (ausencia de ensayos ni perturbaciones ambientales) es de 51 ± 5 Bq·m⁻³, se considera que los ensayos experimentales llevados a cabo con las diferentes fuentes generadoras de radón no suponen un incremento de los valores en aire, considerados como niveles de fondo, en el laboratorio.

Aplicación del método 2: determinación de la constante efectiva

Para determinar la constante de pérdidas del sistema (λ_p , según la ecuación (5.3)), es necesario previamente disponer de aire enriquecido con radón, contenido en un equipo experimental (depósito o tanque) que permita analizar la disminución de la concentración en función del tiempo.

Se determina si ésta se produce debido al decaimiento del radón (según la ley de desintegración) o si, por el contrario, la caída de concentración es más rápida, debido a las posibles pérdidas del sistema.

Para el enriquecimiento y acumulación del radón en aire, se ha depositado la fuente F2 en el interior del bidón de 30 L durante 4 días, del de 120 L durante casi 2 días y se ha instalado dentro el detector Radon Scout Plus. Se monitoriza el incremento de la concentración de radón en aire durante todo el periodo de exposición. Se retira la fuente generadora de radón y se sigue midiendo la concentración de radón en aire en continuo mediante el detector Radon Scout Plus durante el proceso de decaimiento. Los resultados obtenidos de concentración de radón en aire para ambos bidones se muestran en la Figura 5.8.

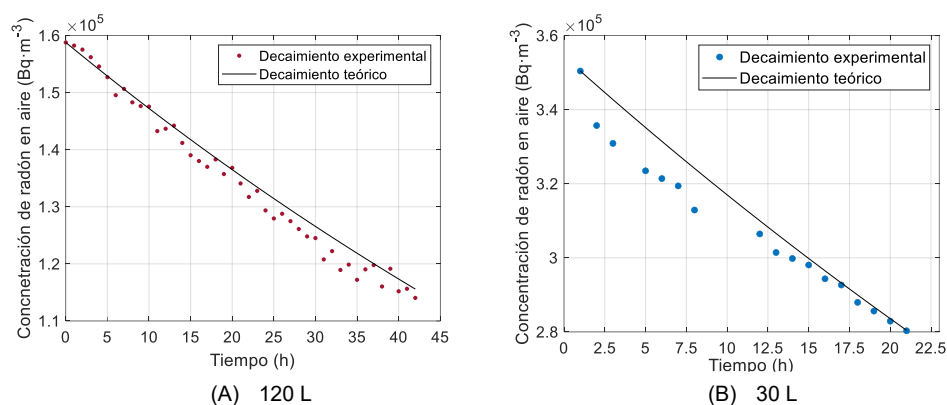


Figura 5.8. Decaimiento teórico y experimental del gas radón en el interior del tanque de 120 (A) y 300 L (B) para la validación de su hermeticidad.

Tal y como se observa en la figura anterior (A), la concentración de radón en el bidón de 120 L registra una disminución desde los $(1.59 \pm 0.016) \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ hasta $(1.14 \pm 0.011) \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ en 42 horas de ensayo.

Los valores experimentales se han ajustado a la ecuación (5.2) fijando como valor de concentración de radón inicial, C_0 , de $(1.59 \pm 0.016) \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$. El valor de la constante efectiva es: $\lambda_{ef} = 0.008139 \text{ h}^{-1}$, por lo que, según la ecuación (5.3, el valor de la constante de pérdidas resulta ser $\lambda_p = 0.000579 \text{ h}^{-1}$, inferior a 0.00358 h^{-1} , considerado como aceptable según la ISO 11665-13.

En la figura (B), se observa una disminución de la concentración de radón en aire desde los $(3.50 \pm 0.035) \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ hasta $(2.8 \pm 0.028) \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ en el bidón de 30 L. Inicialmente, el decaimiento experimental se sitúa por debajo del teórico, representado por la línea negra (según ley de desintegración radiactiva), debido a las posibles pérdidas del sistema. Entre las 10 y las 20 horas de ensayo, el decaimiento experimental es similar al teórico.

Los valores experimentales se ajustan a la ecuación (5.2), considerando que el valor de concentración de radón inicial C_0 es $(3.50 \pm 0.035) \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, y se obtiene un valor de $\lambda_{ef} = 0.01106 \text{ h}^{-1}$.

Sabiendo que la constante desintegración del radón es de $\lambda = 0.00756 \text{ h}^{-1}$, a partir de la ecuación (5.3) se determina que el valor de la constante de pérdidas tiene un valor de 0.00350 h^{-1} , inferior a 0.00358 h^{-1} , valor aceptable según la ISO 11665-13. Se valida así la hermeticidad del bidón de 30 L de capacidad.

5.4.2. Discusión de resultados

Los equipos experimentales seleccionados para los ensayos de radón son dos bidones de polietileno de alta densidad de 30 y 120 L de capacidad. En ambos casos se ha determinado su hermeticidad mediante dos métodos: instalación de detectores pasivos (electretes E-PERM) cerca de los bidones, que permiten analizar si ha habido un incremento de la concentración de radón en aire durante los ensayos y determinación de la constante efectiva, según se establece en la normativa ISO 11665-13 (2017).

Ambas metodologías verifican las condiciones de hermeticidad en las que se va a llevar a cabo la investigación.

5.5. Puesta a punto de los ensayos experimentales. Análisis de la homogeneidad del radón en agua

En este ensayo se realiza un estudio de la concentración de radón en agua con el objetivo de conocer si el gas se distribuye de forma homogénea, en el interior del depósito, a dos alturas diferentes. Los resultados determinan la altura óptima para la extracción de las muestras de agua.

5.5.1. Procedimiento experimental

El procedimiento experimental de este estudio se basa en la instalación de dos grifos a dos alturas diferentes del tanque de polietileno de alta densidad de 120 L de capacidad.

El grifo A se encuentra a una altura de 24 cm sobre la base del tanque y el grifo B a 16 cm. En el interior de este, se deposita la fuente generadora F2, con una actividad de $4.27 \pm 0.27 \text{ kBq}$. La piedra pechblenda se encuentra en el interior de una bolsa tipo zip, sellada herméticamente, que no permite la entrada del agua, pero sí la difusión del radón al exterior.

El bidón se rellena con 50 L de agua, hasta una altura aproximada de 32 cm, 8 cm por encima del grifo A. Esto permite el muestreo de agua casi en la zona de contacto agua-aire. La extracción a través del grifo B posibilita conocer los niveles de radón en un punto intermedio del nivel de agua. En la Figura 5.9 se muestra el tanque empleado y su dimensionado.

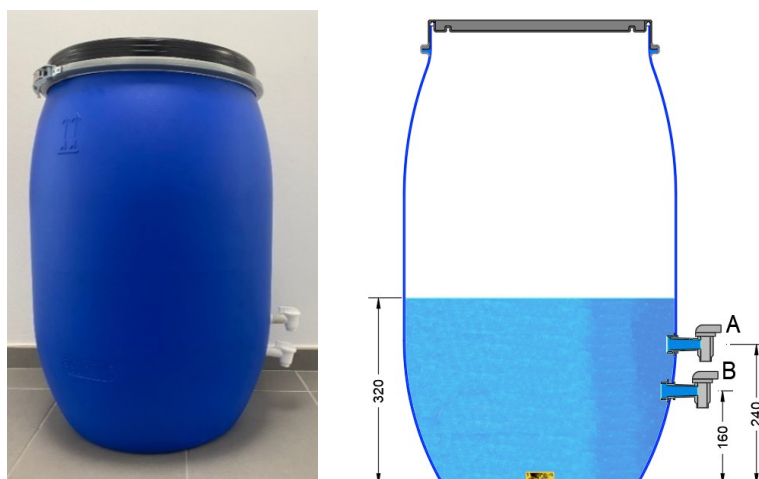


Figura 5.9. Esquema y dimensionado (en mm) del tanque para el análisis de la homogeneidad del gas radón en el agua.

El muestreo se basa en la extracción de agua mediante los dos grifos. Primero se toma una muestra de agua desde el grifo A, en un vaso de precipitados y se pipetea los 8 mL necesarios. Se mezclan con 12 mL de líquido de centelleo en el vial de Teflón y seguidamente se repite el mismo proceso con el muestreo de agua del grifo B. Una vez estén las dos muestras de agua en sus respectivos viales, se agitan durante aproximadamente un minuto para homogeneizar la mezcla agua-líquido de centelleo. Ambas muestras se insertan en el rack del detector y se espera 3 horas para el inicio de las medidas, tiempo requerido para que el gas radón alcance el equilibrio con sus descendientes. El tiempo de conteo en el detector es de 1800 s (30 min). Se realiza la corrección de la actividad en ambos casos, considerando que ambos grifos presentan un retardo (*delay*) de 3 horas

Los ensayos correspondientes al estudio de la homogeneidad del radón se han dividido en dos etapas: una inicial en la que se produce el enriquecimiento del agua durante aproximadamente 13 días y una segunda fase de decaimiento del gas durante 4 días.

En la primera fase, la fuente está situada sobre la superficie del fondo del tanque mientras que, en la segunda, la fuente generadora se ha extraído y únicamente se dispone del radón residual que queda en el agua del interior del tanque. La concentración irá decayendo de acuerdo con su periodo de semidesintegración.

Este estudio permite analizar la evolución de la concentración de radón en agua tanto en presencia como en ausencia de una fuente generadora y comprobar si existen diferencias de estos niveles de gas a diferentes puntos de muestreo. Es decir, si el radón se distribuye de forma homogénea en el agua del interior del tanque. En la Tabla 5.6 se presenta el resumen de las características principales del procedimiento experimental.

Tabla 5.6. Resumen características procedimiento experimental del estudio de la homogeneidad del radón en el interior del depósito.

Características procedimiento: análisis de la homogeneidad del radón en el agua	
Detector	Hidex 600 SL
Tipo de medida	Centelleo líquido
Medio analizado	Agua
Duración ensayo	13 días (enriquecimiento) 4 días (decaimiento)

5.5.2. Resultados experimentales

La concentración de radón en agua se ha analizado mediante el muestreo desde dos puntos diferentes: grifo A y grifo B durante el proceso de enriquecimiento del agua y durante el decaimiento del gas en el medio acuoso. Para verificar la dispersión entre los valores de concentración obtenidos en ambos grifos, se ha calculado su ratio según la ecuación (5.4).

$$Ratio = \frac{\text{Concentración Rn medida en grifo A}}{\text{Concentración Rn medida en grifo B}} \quad (5.4)$$

Los resultados de radón en agua para ambos grifos y la ratio calculada se muestran en la Figura 5.10.

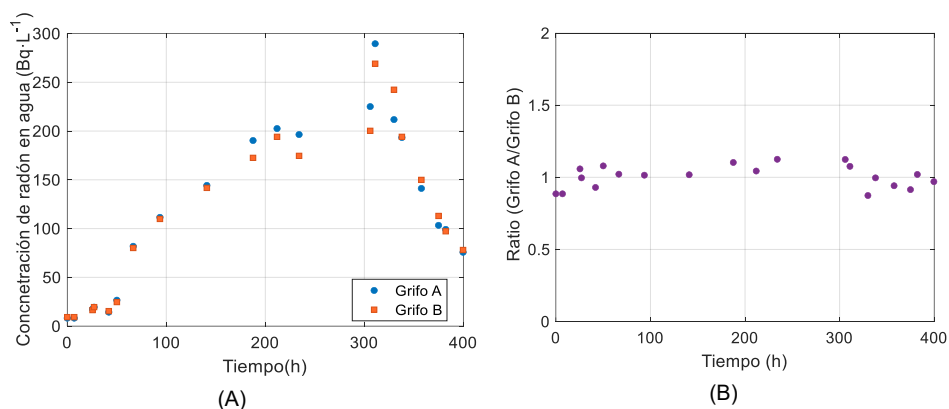


Figura 5.10. (A) Concentración de radón en agua muestreados en grifo A y grifo B. (B) Ratio de la concentración de radón en agua para ambos grifos.

Como se puede observar en la figura anterior (A), se produce un incremento de la concentración de gas radón hasta las 306 horas (≈ 13 días) y, una disminución de la concentración durante 94 horas (≈ 4 días).

Inicialmente la concentración de radón en agua es prácticamente nula, valores normales para un agua de grifo en la ciudad de València, y se va enriqueciendo hasta alcanzar los 225.07 ± 22.5 Bq·L⁻¹ y 200.26 ± 20.02 Bq·L⁻¹ con el grifo B, en 306 horas, para el grifo A y el B, respectivamente.

Una vez se ha extraído la fuente generadora de radón, la concentración disminuye hasta los 75.70 ± 7.60 Bq·L⁻¹ para el grifo A, y hasta 78.95 ± 7.90 Bq·L⁻¹ para el grifo B después de 94 horas aproximadamente desde la retirada de la fuente.

Analizando el sesgo de la concentración medida a través de la extracción del grifo A y del grifo B, tomando como referencia el grifo A, se comprueba que hasta las 187 horas el promedio de esta variación es inferior al 7%. Desde ese punto hasta las 360 horas, la dispersión de resultados aumenta ligeramente en un rango de entre 9 y 14%. En el último tramo de muestreo, desde las 360 hasta las 400 horas la dispersión vuelve a disminuir hasta valores inferiores al 10%. La variación observada entre las concentraciones medidas en ambos grifos se encuentran dentro del rango de incertidumbre de medida, en torno al 6-9%.

Asimismo, analizando los valores de ratio calculada de la Figura 5.10 (B), se observa que, en cada instante de tiempo y para cada grifo, oscila ligeramente entre 0.88 y 1.12. Esta ratio verifica que los resultados del muestreo de agua a diferentes alturas son similares y que, por tanto, la concentración de radón en agua se puede considerar homogénea.

5.5.3. Discusión de resultados

De los resultados obtenidos de la concentración de radón en el agua del interior del tanque, se observa que los valores alcanzados son muy similares a ambas alturas (grifo A y grifo B) para un mismo tiempo de medida, tanto en la fase de enriquecimiento como en la de decaimiento.

Se ha calculado también el sesgo, tomando como valor de referencia el grifo A y se sitúa por debajo del 15%. Este valor de sesgo es considerado como aceptable según los criterios internos del laboratorio. A partir de la ratio calculada (grifo A/grifo B) se observa que esta varía entre ligeramente entre 0.88 y 1.12.

Dado que el sesgo calculado es inferior al 15%, se considera que la distribución de radón en agua es homogénea verticalmente en el interior del depósito y que podrían utilizarse, indistintamente, cualquiera de las dos alturas para la extracción de agua. A efectos prácticos y para una mayor comodidad en el muestreo de agua, se seleccionada, para todos los ensayos posteriores, el grifo A, insertado a 24 cm sobre la base.

5.6. Puesta a punto de los ensayos experimentales. Análisis del método de extracción de muestras de agua.

En este ensayo se analizan dos métodos de extracción del agua del interior del tanque con el objetivo de conocer su influencia en los resultados de las concentraciones de radón obtenidas, y comprobar si ambos métodos pueden considerarse como válidos y se pueden utilizar para el muestreo de agua indistintamente.

5.6.1. Procedimiento experimental

El procedimiento experimental se basa en la extracción de muestras de agua a través de un grifo (grifo A) y una jeringa, ambos a una altura de 24 cm sobre la base del bidón. En el interior de éste se ha depositado la fuente generadora F2, de 45 ± 2.84 kBq, también dentro de una bolsa tipo zip.

El bidón, igual que en el estudio de la homogeneidad del radón en agua, se ha rellenado con 50 L de agua de grifo, libre de radón.

En la Figura 5.11 se muestra el esquema del tanque y la posición de ambas herramientas para la extracción del agua del interior del tanque.

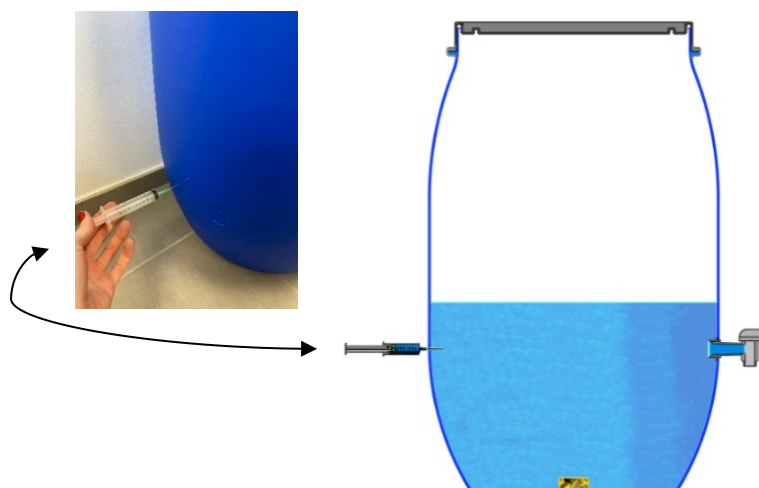


Figura 5.11. Esquema del tanque para el análisis del método de extracción de muestras de agua.

La muestra de agua extraída desde el grifo es vertida a un vaso de precipitados, pipetada la alícuota de 8 mL y mezclada con 12 mL de líquido de centelleo en el vial. Por su parte, la jeringa está insertada en el bidón, lo que permite la extracción de agua directamente desde su interior evitando el paso intermedio del vaso de precipitados como sucede con el grifo A. La muestra, una vez extraída con la jeringa, se mezcla con el líquido de centelleo evitando también el burbujeo.

En ambos casos, tanto si la muestra ha sido extraída mediante jeringa o a través del grifo, se agitan los viales durante 1 minuto y se espera 3 horas hasta alcanzar equilibrio entre radón y sus descendientes. El periodo de conteo es de 1800 s (30 min) y se realiza una corrección de la actividad obtenida según el tiempo de retardo de cada caso. Estos ensayos se han llevado en una única fase de enriquecimiento de agua durante 42 horas.

En la siguiente Tabla 5.7 se muestra un resumen de las características principales del procedimiento experimental.

Tabla 5.7. Resumen características procedimiento experimental del ensayo.

Características procedimiento: determinación método de extracción de agua	
Detector	Hidex 600 SL
Tipo de medida	Centelleo líquido
Medio analizado	Agua
Duración ensayo	42 horas

5.6.2. Resultados experimentales

Los resultados obtenidos en el muestreo de agua extraída a través de un grifo o directamente de una jeringa se muestran en la Figura 5.12. Para la comparación de los resultados, se ha calculado también el valor de ratio, tomando como referencia la extracción mediante grifo, según la ecuación (6.5)

$$Ratio = \frac{Concentración\ Rn\ medida\ en\ jeringa}{Concentración\ Rn\ medida\ en\ grifo} \quad (5.5)$$

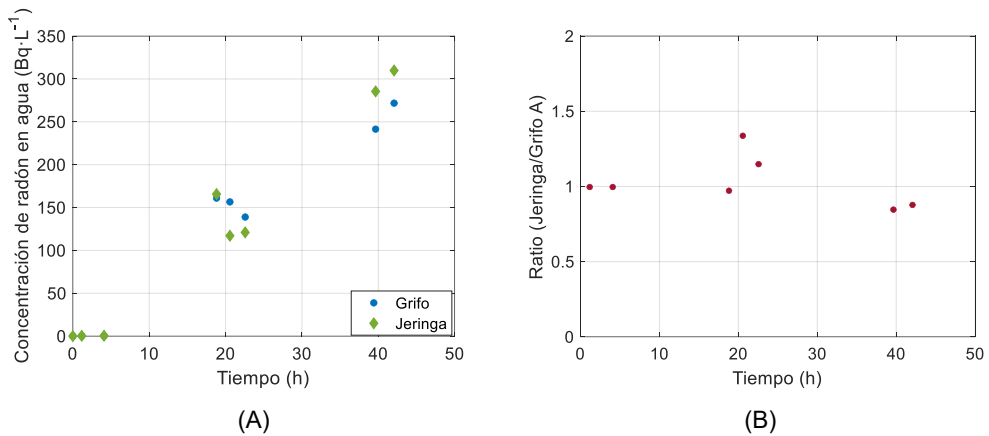


Figura 5.12. Concentración de radón en agua en función del método de extracción utilizado. (A) Concentración de radón en agua medida mediante el grifo y la jeringa. (B) Ratio calculada (Jeringa/Grifo A)

Tal y como se observa en la figura anterior, se produce un enriquecimiento del agua con radón que varía desde una concentración cercana a los $0 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ hasta $271.79 \pm 27.20 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ para el grifo, y hasta $309.89 \pm 30.91 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ para la jeringa, durante el tiempo de exposición a la fuente generadora.

Inicialmente, para concentraciones de radón relativamente bajas, ambos métodos de extracción ofrecen resultados similares con un sesgo inferior al 1%. Esta se ve incrementada para un periodo de enriquecimiento del agua de 20 a 42 horas, con un sesgo promedio inferior al 25%. Esto se debe principalmente a que, en el caso de utilizar la jeringa, el agua se extrae directamente del tanque y se inyecta en el vial de centelleo mientras que, si se muestrea a través del grifo, se deposita en un vaso de precipitados y de ahí se pipetea, incrementando el proceso de burbujeo y, por tanto, la posible pérdida de radón. Por ello, los valores de radón obtenidos mediante la extracción con la jeringa son generalmente, mayores. Cabe destacar que, en el proceso de inyección de la muestra de agua en el vial de teflón (tanto para el grifo como para la jeringa), las pérdidas de gas se consideran nulas ya que se introduce directamente en el seno del líquido de centelleo.

En cuanto a la ratio calculada, esta oscila entre 0.87 y 1.33, validando los valores del sesgo calculados. El primero de los puntos, corresponde con un valor de concentración 0 en por ambos métodos de extracción por lo que en esa figura aparece un punto de muestreo menos que en la figura (A).

En otras investigaciones (Gruber et al., 2009), se ha observado que el muestreo directo de extracción de agua y su pipeteo permiten obtener valores ligeramente superiores de radón en agua respecto a otros métodos en los que el grado de burbujeo de la muestra es superior. Esto se ha verificado a través de los resultados obtenidos a escala laboratorio, en los que se ha observado que cuanto más enriquecida está el agua, mayor es la concentración medida utilizando la jeringa como método de extracción.

A nivel operativo y experimental, se observó que las jeringas podían sufrir un mayor taponamiento y que en algunos casos el muestreo del agua se hacía de forma ineficiente, dado que no siempre se podía aplicar la misma presión sobre la jeringa. Por esto, se ha seleccionado como método de extracción de las muestras de agua el grifo situado a 24 cm de la base.

5.6.3. Discusión de resultados

En este ensayo se han analizado dos métodos de extracción de agua para determinar la concentración de radón en las muestras.

La dispersión de los resultados obtenidos mediante los dos métodos de extracción oscila entre el 1 y el 20%, valores admisibles en laboratorios de radiactividad ambiental. Se calcula también la ratio de concentración (grifo/jeringa) que varía entre 0.87 y 1.33.

Pese a que el sesgo se encuentra entre los valores aceptables para el laboratorio, y que podrían extraerse las muestras de agua tanto a través de la jeringa como del grifo, se ha seleccionado el grifo como método de extracción de agua para todos los ensayos posteriores. Se evitarían así las posibles obstrucciones en la extracción de agua en la jeringa, observadas a nivel experimenta.

CAPÍTULO 6

ENSAYOS EXPERIMENTALES DE TRANSFERENCIA DE RADÓN

En este capítulo se presentan los resultados experimentales obtenidos en los diferentes ensayos de transferencia de radón, tanto en aire como en la interfase agua-aire. En cada caso, se detalla el procedimiento experimental seguido, los resultados y las conclusiones parciales asociadas a cada tipo de ensayo.

6.1. Introducción

En este capítulo se presentan los resultados obtenidos en los ensayos experimentales realizados en los depósitos de polietileno de alta densidad de 30 L y 120 L de capacidad. El análisis de la transferencia de radón en agua y en aire se ha dividido en tres bloques:

- 1) Estudio de la acumulación de radón en aire, generado por las fuentes F1, F2 y F3.
- 2) Estudio del comportamiento de radón en agua y en aire en condiciones de agua estáticas.
- 3) Estudio del comportamiento de radón en agua y en aire en condiciones de agua en agitación.

El primer bloque consiste en analizar la acumulación de radón en aire generado por las tres fuentes (F1, F2 y F3) en el interior de los dos tanques experimentales (30 L y 120 L). Se determina la concentración máxima en aire alcanzada y se verifica si la acumulación del ^{222}Rn sigue una misma tendencia, independientemente de la actividad de la fuente y del volumen de aire

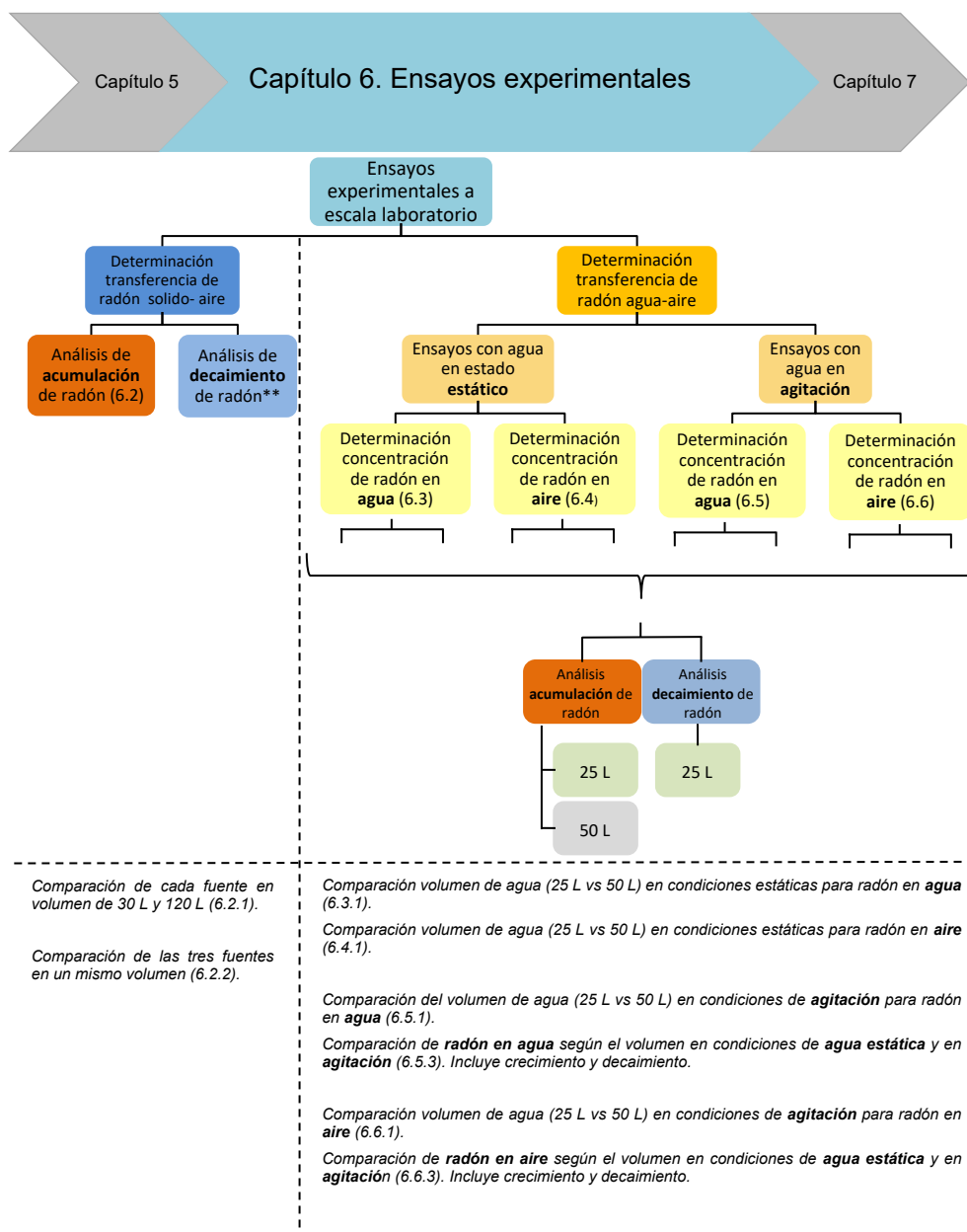
muestreado. El proceso de decaimiento de radón en aire se ha analizado en el Capítulo 5, en los ensayos de hermeticidad de ambos tanques.

En segundo lugar, se analizan los resultados obtenidos de concentración de radón en agua, en estado estático, durante el proceso de enriquecimiento (fuente F2) para volúmenes de 25 L y 50 L de agua. En esas mismas condiciones de ensayo, se analiza también la acumulación de radón en aire en el interior del tanque, producida por la liberación del gas desde el agua. Posteriormente, se extrae la fuente F2 del equipo y de nuevo se monitoriza el decaimiento del gas radón en agua y en aire. Estos ensayos se llevan a cabo únicamente con 25 L de agua ya que se había observado que cuando se utilizaban 50 L el enriquecimiento era mucho más lento y se requerían tiempos experimentales muy elevados, no viables a escala laboratorio.

En el tercer bloque se pretende conocer los procesos de transferencia de radón también en condiciones de turbulencia de agua, fenómeno habitual en cualquier industria o vivienda. Para ello, se ha añadido una pequeña bomba de agitación al montaje experimental que mantiene constante la turbulencia durante toda la investigación. Siguiendo el mismo procedimiento experimental que para condiciones de agua estática, se analiza el comportamiento del gas radón en el medio acuoso y en aire durante su acumulación y durante su decaimiento, una vez retirada la fuente que lo genera.

Por último, se realiza una comparación entre los niveles de concentración de radón en estado estático y en agitación, tanto para agua como para aire.

En la Figura 6.1 se presenta un esquema de los ensayos llevados a cabo.



** Los ensayos experimentales de radón en aire en condiciones de decaimiento se han utilizado para el análisis de la hermeticidad de los depósitos. (apartado 5.4)

Figura 6.1. Esquema conceptual de los ensayos experimentales llevados a cabo a escala laboratorio.

En los siguientes apartados se detalla el procedimiento experimental de cada bloque de ensayos, se analizan los resultados obtenidos y se establecen las conclusiones parciales en cada caso.

6.2. Determinación de la concentración de radón en aire

El objetivo principal de esta parte es el análisis del comportamiento del radón que emana de las tres fuentes naturales en dos tanques de polietileno de alta densidad de 30 L y 120 L de capacidad.

En este estudio se plantea si, independientemente de la fuente generadora y del volumen de aire empleado, el comportamiento del gas sigue una misma tendencia. Asimismo, se predicen los niveles de radón en el aire que se alcanzarán en cada tanque en función del tiempo.

6.2.1. Análisis de la acumulación de radón en aire

Procedimiento experimental

Las tres fuentes de radón, cuyas actividades se han determinado en el capítulo anterior, son:

- Fuente 1 (F1): 1.84 ± 0.12 kBq
- Fuente 2 (F2): 4.27 ± 0.27 kBq
- Fuente 3 (F3): 45.10 ± 2.84 kBq

Las cámaras de aire donde se acumulará el radón son los dos tanques de polietileno de alta densidad, de 120 L y 30 L de volumen respectivamente, ambos impermeables al radón y sellados herméticamente del exterior.

En el interior del tanque se deposita la fuente de radón sobre la base y se inserta un soporte metálico justo en el centro del depósito y por encima de la fuente. En él se ubica el detector en continuo de radón en aire, tal y como se muestra en la Figura 6.2.



Figura 6.2. Imagen de los dos bidones con sus respectivos soportes metálicos y el detector Radon Scout Plus.

El diagrama de cada montaje experimental y sus dimensiones se muestra en la siguiente Figura 6.3.

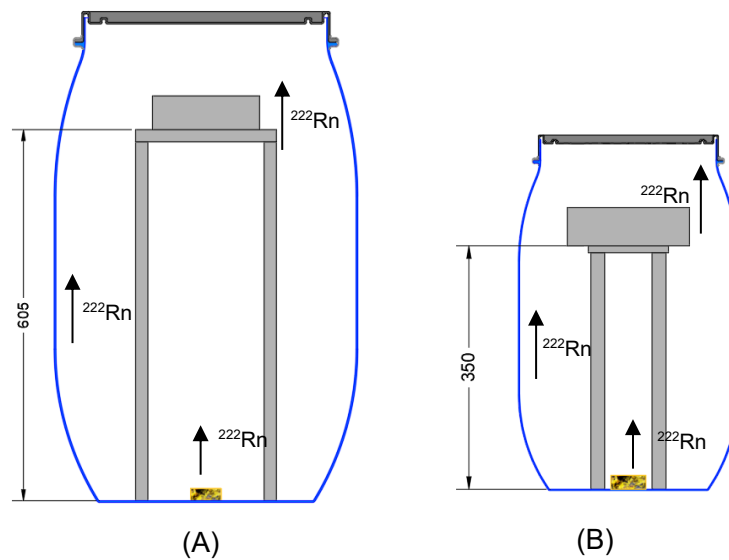


Figura 6.3. Esquema del depósito experimental para el análisis de las fuentes en aire. Tanque de 120 L (A); tanque de 30 L (B).

En todos los ensayos, el detector utilizado para medir la concentración de radón en aire es el Radon Scout Plus (SARAD Company), descrito anteriormente en el Capítulo 4. En función de la actividad de la fuente, los tiempos de exposición varían: se utilizan periodos mayores cuanto menor es la actividad de la fuente dado que la acumulación del gas en el interior del equipo es más lenta. Los tiempos de ensayo se muestran en la siguiente Tabla 6.1

Tabla 6.1. Tiempos de ensayo para cada fuente generadora de radón.

Fuente	Tiempos de ensayo (h)
Fuente F1 (1.84 ± 0.12 kBq)	138
Fuente F2 (4.27 ± 0.27 kBq)	97
Fuente F3 (45.1 ± 2.84 kBq)	48

Una vez depositada la fuente en el equipo experimental, se introduce el soporte metálico y se emplaza el detector, previamente purgado, sobre él. Se enciende mediante la pestaña *Run* y se sella el tanque mediante el cierre de ballesta. Finalizada la exposición, se abre el tanque, se extrae el detector y mediante la pestaña *Stop* se da por finalizada la medición de radón en aire. Los datos quedan ya registrados en la memoria del monitor, que se vuelve a poner en marcha para su purga.

En función de la actividad máxima alcanzada, el tiempo de purga variará. Para estos muestreos, se ha fijado como tiempo mínimo las 24 horas, hasta que alcance valores de radón en aire típicos para el laboratorio (alrededor de 50 y 60 Bq·m⁻³). El software utilizado para la descarga de datos es el *Radon Vision*, que permite una visualización previa de los resultados y su almacenamiento en formato .txt.

A partir de los resultados obtenidos, se va a representar gráficamente la concentración de radón en aire de cada fuente muestreada, en cada uno de los depósitos. Asimismo, se mostrarán las diferencias entre los valores mediante el cálculo del sesgo tomando como valor de referencia el bidón pequeño, se calcula según la ecuación (6.1) particularizada para estos ensayos

$$Sesgo_{bidones} (\%) = \frac{|C_{Rn-BG} - C_{Rn-BP}|}{C_{Rn-BP}} 100, \quad (6.1)$$

siendo C_{Rn-BP} el valor de la concentración de radón en aire en el bidón pequeño (BP), y C_{Rn-BG} el valor de la concentración de radón en aire en el bidón grande (BG).

En la Tabla 6.2 se muestran las características principales del procedimiento experimental.

Tabla 6.2. Resumen características procedimiento experimental de la acumulación de radón en aire.

Características procedimiento: **análisis de la acumulación de radón en aire**

Detector	Radon Scout Plus
Tipo de medida	Difusión
Medio analizado	Aire
Duración ensayos	138 horas (F1) 96 horas (F2) 48 horas (F3)

A continuación, se presentan los resultados obtenidos en el análisis de la evolución de la concentración de radón para diferentes fuentes y en diferentes volúmenes de aire.

Resultados de concentración de radón en aire para la fuente F1

La concentración de radón en aire generada por la fuente F1 (1.84 ± 0.12 KBq) en los depósitos de 30 y 120 L durante 138 horas, se muestran en la Figura 6.4.

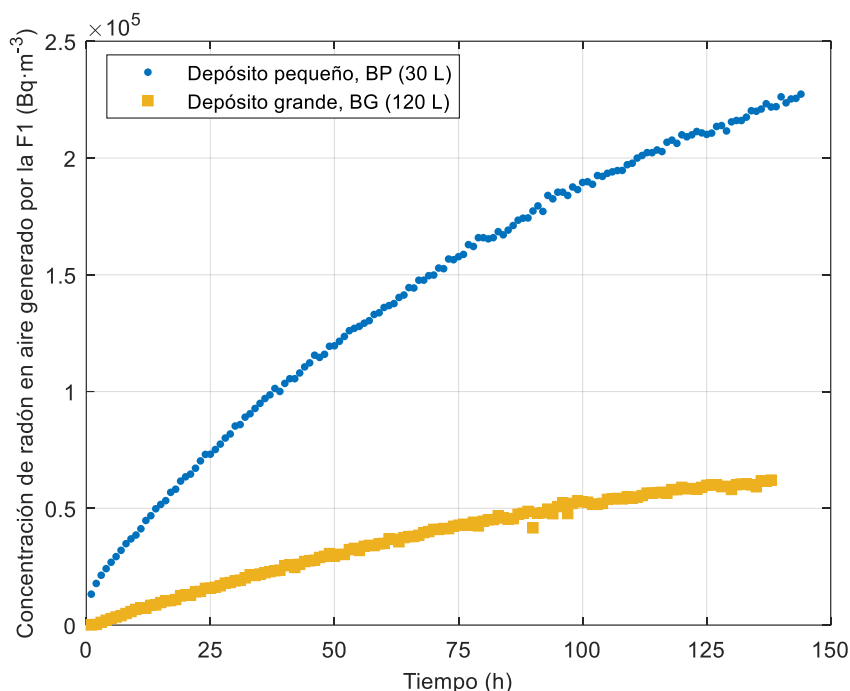


Figura 6.4. Radón en aire generado por la fuente F1 en los depósitos de 30 L y 120 L.

La concentración de radón en aire, durante las 138 horas de exposición de la fuente generadora, alcanza los $(2.22 \pm 0.22) \cdot 10^5$ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ en el depósito pequeño (BP) y $(6.21 \pm 0.62) \cdot 10^4$ $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ en el de mayor volumen (BG). Como se observa, cuanto mayor es el volumen de aire en el que puede diluirse el radón (120 L frente a 30 L), menores concentraciones se alcanzan.

Asimismo, se calcula la ratio de las concentraciones de radón en aire (Relación entre concentración en bidón pequeño y en bidón grande) para analizar si existe relación entre el volumen de aire muestreado y la concentración de radón acumulada. Se observa que, inicialmente, para las primeras dos horas de ensayo, la ratio se sitúa por encima de 50. Es decir, la concentración de radón en aire en el bidón pequeño es 50 veces superior a la del bidón grande. A partir de la tercera hora de ensayo, la ratio va disminuyendo, partiendo de una ratio 18 veces superior en el bidón de 30 L, hasta situarse en

torno a 5 veces superior a las 19 horas. A partir de este momento, y hasta finalizar el ensayo a las 138 horas, la ratio oscila alrededor de 4. Estos resultados reflejan que, transcurridas 19 horas, la distribución del radón en aire es homogénea y se mantiene constante a lo largo de todo el muestreo.

Se evidencia que la relación entre el volumen de aire muestreado (30 L frente a 120 L) y la de acumulación de radón en aire son similares e iguales a una ratio de 4:1.

La acumulación de radón en aire presenta una tendencia similar a la observada en otras investigaciones, utilizando el mismo detector en continuo para la medición de ^{222}Rn (Fuente, 2015 y 2018; Celaya, 2017). Sin embargo, en este caso, y debido a la actividad de la fuente utilizada es menor que en otros estudios, los valores de concentración alcanzados son también menores.

Tomando como valor de referencia el depósito de menor volumen, se ha calculado el sesgo de las concentraciones en ambos depósitos para cuatro tiempos de exposición diferentes para validar que cuanto menor es el volumen de aire ensayado, mayor es la concentración de radón en aire alcanzada. Los resultados de dicha diferencia se muestran en la Tabla 6.3.

Tabla 6.3. Cálculo de la variación de concentración de radón en aire en ambos depósitos para la fuente F1.

	Concentración de radón en aire en BP ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)	Concentración de radón en aire en BG ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)	Sesgo (%)
t = 1 h	$(1.32 \pm 0.13) \cdot 10^4$	67 ± 6.7	99.49
t = 30 h	$(8.52 \pm 0.85) \cdot 10^4$	$(1.89 \pm 0.19) \cdot 10^4$	77.81
t = 96 h	$(1.85 \pm 0.18) \cdot 10^5$	$(5.24 \pm 0.52) \cdot 10^4$	71.75
t = 138h	$(2.22 \pm 0.22) \cdot 10^5$	$(6.21 \pm 0.62) \cdot 10^4$	72.01

Según los valores obtenidos, para un mismo tiempo de muestreo, la acumulación en el bidón pequeño es casi 10 veces superior respecto al bidón grande, donde hay un mayor volumen de radón en el que difundirse, como cabría esperar. Durante un periodo de hasta 30 horas, esta variación es mucho más pronunciada por el efecto del volumen del aire mientras que a partir de ese momento, la diferencia entre ambas concentraciones empieza a equilibrarse y se mantiene constante en el tiempo. En ese periodo se produce por un lado un incremento de la concentración del radón generado por la fuente F1 pero también el propio decaimiento del gas.

Resultados de concentración de radón en aire para la fuente F2

Los valores de la concentración de radón en aire, generada a partir de la fuente F2, de 4.27 ± 0.27 kBq, durante un periodo de exposición de 96 horas, se muestran en la Figura 6.5

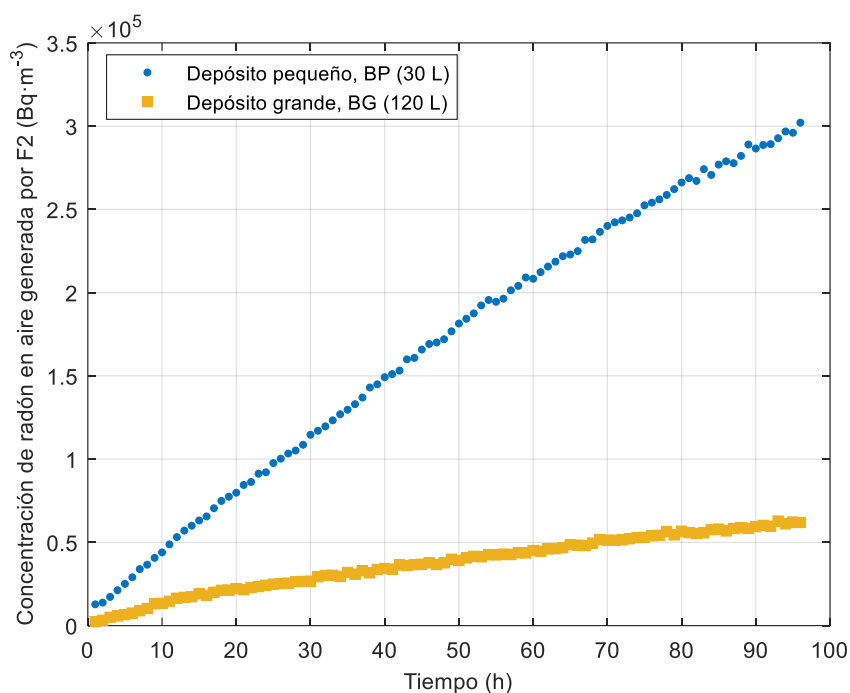


Figura 6.5. Radón en aire generado por la fuente F2 en los depósitos de 30 L y 120 L.

De nuevo, se observa una mayor acumulación de radón en el depósito de menor volumen, debido a la menor dilución del gas en el aire. Se alcanza una concentración final de $(3.30 \pm 0.33) \cdot 10^5$ Bq·m⁻³ en el bidón de 30 L mientras que en el de 120 L el valor final es de $(7.28 \pm 0.72) \cdot 10^4$ Bq·m⁻³. La pendiente de las rectas es mucho más pronunciada para un volumen de aire inferior, dado que, a menor capacidad, se produce una acumulación de radón mucho más rápida.

En este caso, la concentración de radón en aire en el bidón de 30 L y el de 120 L es más similar y la ratio calculada se sitúa en torno a 2:1 hasta las 20 horas de ensayo, cuando la ratio es de 3:1. Entre las 20 y las 30 horas, la ratio crece ligeramente hasta 3:1. A partir de ese momento, la ratio se fija y se mantiene en 4:1. Es decir, la concentración de radón en aire en el bidón pequeño de 30 L es 4 veces superior a la del bidón de 120 L.

El valor de la ratio obtenida se correspondería con la relación de los volúmenes de aire muestreados, que también es 4:1.

De igual manera que en el caso anterior, el radón se acumula en aire según el comportamiento ya descrito en investigaciones anteriores (Fuente, 2015; Celaya, 2017) por lo que se verifica su comportamiento condiciones controladas.

Asimismo, se seleccionan tres tiempos de medida para calcular el sesgo en ambos depósitos según la ecuación (6.1). Los resultados obtenidos se muestran en la Tabla 6.4.

Tabla 6.4. Cálculo de la variación de concentración de radón en aire en ambos depósitos para la fuente F2.

	Concentración de radón en aire en BP ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)	Concentración de radón en aire en BG ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)	Sesgo (%)
t = 3 h	$(1.57 \pm 0.16) \cdot 10^4$	$(9.86 \pm 0.99) \cdot 10^3$	37.05
t = 30 h	$(1.26 \pm 0.13) \cdot 10^5$	$(3.34 \pm 0.33) \cdot 10^4$	73.51
t = 96 h	$(3.30 \pm 0.33) \cdot 10^5$	$(7.28 \pm 0.73) \cdot 10^4$	77.92

La concentración medida en ambos bidones varía inicialmente un 37.05%. Este sesgo se incrementa hasta estabilizarse entre 70 y 80%. Se observa de nuevo que, para tiempos inferiores a 30 horas, la diferencia de concentraciones es mayor ya que se produce una acumulación de radón más rápida para un volumen de aire menor.

Resultados de concentración de radón en aire para la fuente F3

La tercera fuente generadora de radón se expone durante un periodo de 48 horas, en los depósitos de 30 y 120 L. Los resultados obtenidos se muestran en la Figura 6.6.

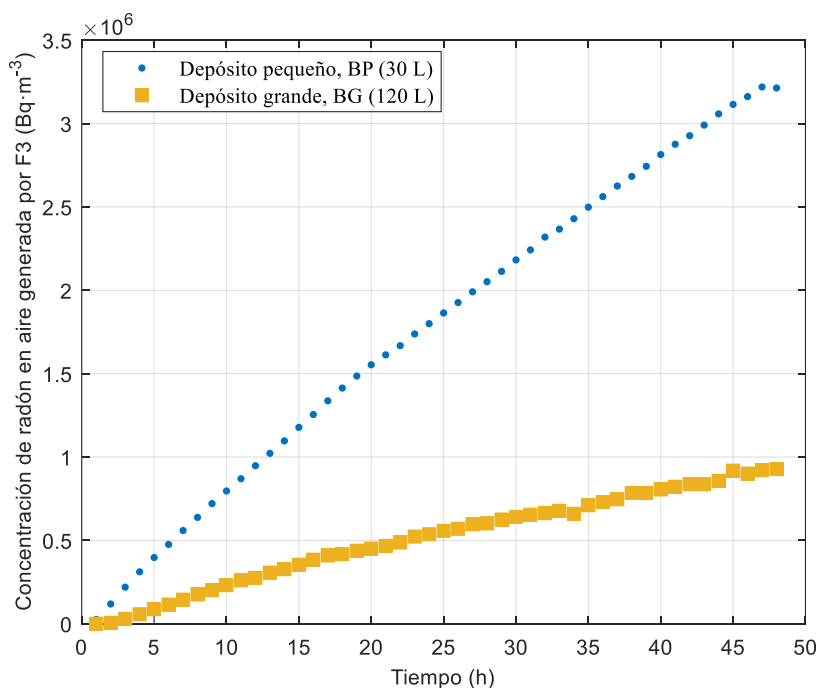


Figura 6.6. Radón en aire generado por la fuente F3 en los depósitos de 30 L y 120 L.

Tal y como sucedía en los ensayos anteriores, hay una acumulación mayor de la concentración de radón en aire cuanto mayor es la actividad de la fuente y menor es el volumen de aire en el que se puede difundir el gas. En el depósito pequeño, se alcanzan $(3.21 \pm 0.32) \cdot 10^6 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, mientras que en el grande la concentración llega hasta $(0.93 \pm 0.093) \cdot 10^6 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ en apenas 48 horas.

Si se calcula la relación entre la concentración entre ambos bidones, la ratio, se observa que va aumentando desde 2:1 hasta 4:1 durante las primeras horas de ensayo. A partir de ese momento la ratio oscila ligeramente, por lo que la concentración de radón en aire en el bidón pequeño es entre 4 y 4.5, veces superior a la del bidón grande.

De nuevo se observa que existe una relación entre el volumen de aire muestreado y la relación de la cantidad de radón que se acumula en cada caso.

En estos ensayos, utilizando una fuente de mayor actividad, se ratifica el comportamiento del gas radón en aire, con una misma tendencia a las mediciones anteriores y según investigaciones previas consultadas (Fuente, 2015; Celaya, 2017).

Tal y como se ha hecho con las anteriores fuentes, se seleccionan tres tiempos de medida para calcular el sesgo de las concentraciones según la ecuación (6.1) en los dos depósitos. Los resultados obtenidos se muestran en la Tabla 6.5.

Tabla 6.5. Cálculo de la variación de concentración de radón en aire en ambos depósitos para la fuente F3.

	Concentración de radón en aire en BP ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)	Concentración de radón en aire en BG ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)	Sesgo (%)
t = 1 h	$(2.64 \pm 0.26)\cdot 10^4$	$(1.10 \pm 0.11)\cdot 10^2$	99.58
t = 30 h	$(2.18 \pm 0.22)\cdot 10^6$	$(6.41 \pm 0.64)\cdot 10^5$	70.63
t = 48 h	$(3.21 \pm 0.32)\cdot 10^6$	$(9.28 \pm 0.93)\cdot 10^5$	71.12

Cuanto mayor es la fuente generadora de radón, como en estos ensayos con una actividad de 45.1 ± 2.84 kBq, mayor es la concentración de radón en aire que se alcanza.

Se ha calculado también el sesgo, que oscila desde 99.50% hasta 71.12%. Inicialmente, debido a la elevada actividad de la fuente, la concentración en el bidón pequeño crece con una pendiente mucho más pronunciada en menos de 30 horas debido a la acumulación en un volumen más reducido. Posteriormente, la variación entre ambos depósitos se mantiene constante, creciendo en una misma proporción al hacerse más relevante el propio decaimiento del radón.

6.2.2. Análisis comparativo de las diferentes fuentes generadoras de radón

En este apartado se presenta una comparación de la concentración de radón en aire para un montaje experimental (Depósito pequeño o depósito grande) con las tres fuentes.

En la Figura 6.7 se muestran los resultados experimentales de radón en aire generados por F1, F2 y F3 en el bidón de 30 L.

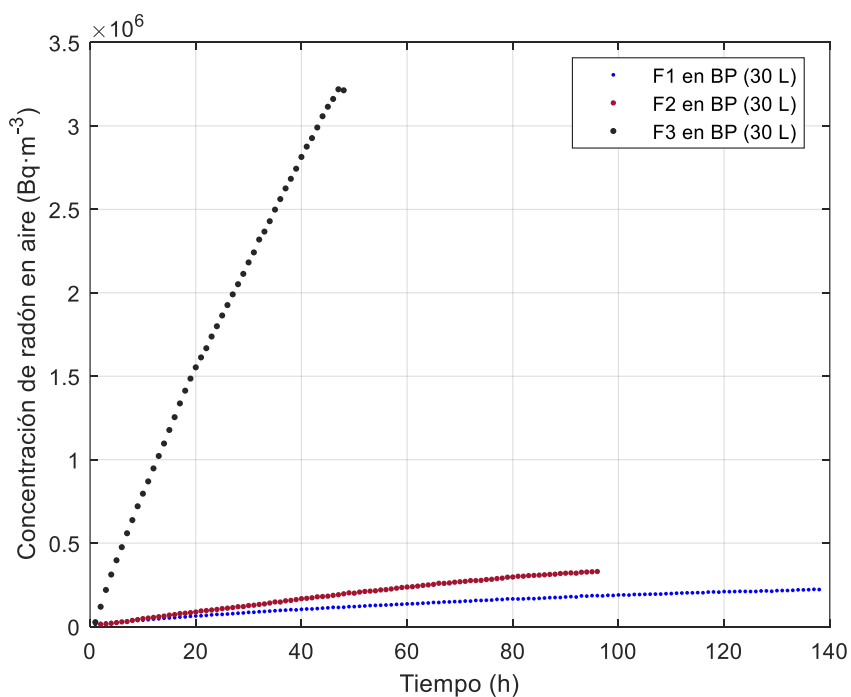


Figura 6.7. Radón en aire generado por las fuentes F1, F2 y F3 en el depósito de 30 L.

Tal y como se observa en la figura anterior, para un mismo volumen de aire, en el interior del depósito, la acumulación de radón presenta una pendiente más pronunciada cuanto mayor es la actividad de la fuente.

Comparando los resultados para las fuentes F1 y F2 destaca que, la ratio F2:F1 es inferior a 2:1 en los diferentes tiempos de ensayo. Es decir, la concentración de radón generada por la fuente F2 es entre 0.87 y 1.87 veces superior a la generada por la fuente F1 en el bidón de 30 L. Esto puede deberse a que ambas fuentes presentan una actividad del mismo orden de magnitud, un poco más del doble para la F2.

Se observa que la concentración de radón en aire acumulada es mayor cuanto más elevada es la actividad de la fuente generadora, por eso se alcanzan niveles superiores con la fuente F3, que presentan una pendiente más pronunciada.

Se comparan también los resultados experimentales obtenidos en el bidón grande para las tres fuentes. Los resultados de la acumulación de radón en aire en el interior del depósito de 120 L se muestran en la Figura 6.8

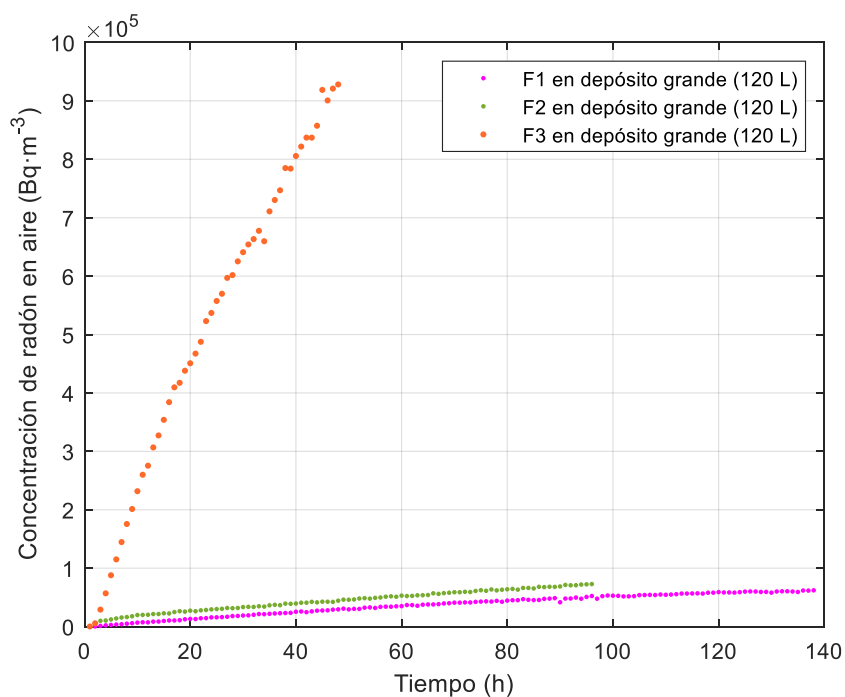


Figura 6.8. Radón en aire generado por la fuente F1, F2 y F3 en el depósito de 120 L.

Según lo observado en los resultados del bidón pequeño, la acumulación de radón en aire en el bidón grande se produce de forma análoga: cuanto mayor es la actividad de la fuente, mayor es la concentración de radón para un mismo tiempo de ensayo.

A partir del cálculo de la ratio F3:F1 se observa que, para el depósito de 120 L de capacidad, la concentración de radón en aire generado por la F3 es más de 30 veces superior a la generada por la F1 (ratio > 30:1). De igual manera, se analiza la ratio F3:F2 que en este caso se sitúa, a partir de las 20 horas de ensayo, en 19:1. Sin embargo, la tendencia de los resultados de la fuente F3 indican un posible aumento de la ratio si el tiempo de ensayo fuese mayor.

La ratio F2:F1, oscila en torno a 2 (ratio 2:1) a lo largo de periodo de exposición de las fuentes, igual que sucedía para un volumen de 30 L de aire.

6.2.3. Discusión de resultados

En este ensayo se han utilizado tres fuentes con actividades diferentes para analizar la acumulación de radón generado en dos depósitos de 30 L y 120 L.

Según los resultados experimentales, se ha verificado que, para una menor actividad de la fuente menor es la concentración alcanzada en el interior del tanque debido a una inferior capacidad de emisión.

Se ha calculado el sesgo de la concentración de radón en aire en ambos bidones y se concluye que, a partir de las 30 horas de exposición, para las tres fuentes y en los dos tanques ensayados se sitúa en torno al 70-80%. Esto podría deberse a que la velocidad de difusión del radón empieza a mantenerse constante en el tiempo. El valor de la ratio calculada verifica la relación 4:1 entre la concentración y el volumen de aire del interior de los bidones.

Se ha observado que, independientemente de actividad de la fuente generadora y del volumen de aire analizado, la transferencia de radón desde la fuente emisora y su acumulación en aire sigue una misma tendencia.

6.3. Determinación de radón en agua. Ensayos con agua en estado estático

En este apartado se analiza la concentración de radón en agua, generada por una fuente que la enriquece, en el interior de un depósito sellado de 120 L de capacidad. Se estudia el efecto que tiene este proceso en dos volúmenes de agua diferentes (25 L y 50 L).

Asimismo, cuando el agua ya está enriquecida, se retira la fuente y se realizan las mediciones de radón en agua durante la disminución de la concentración.

6.3.1. Análisis de la acumulación de radón en agua

Procedimiento experimental

El procedimiento experimental de este ensayo se basa en depositar en el fondo del tanque, sobre la base, la fuente generadora de radón, F2, con una actividad de 4.27 ± 0.27 kBq.

El depósito se rellena con 25 o con 50 L de agua y se instala un soporte metálico, de mayor altura que el nivel de agua, sobre el que se deposita el detector de radón en aire. El muestreo de agua se realiza a través del grifo A, a una altura de 240 mm sobre la base.

El esquema del montaje de los dos ensayos se muestra en la Figura 6.9.

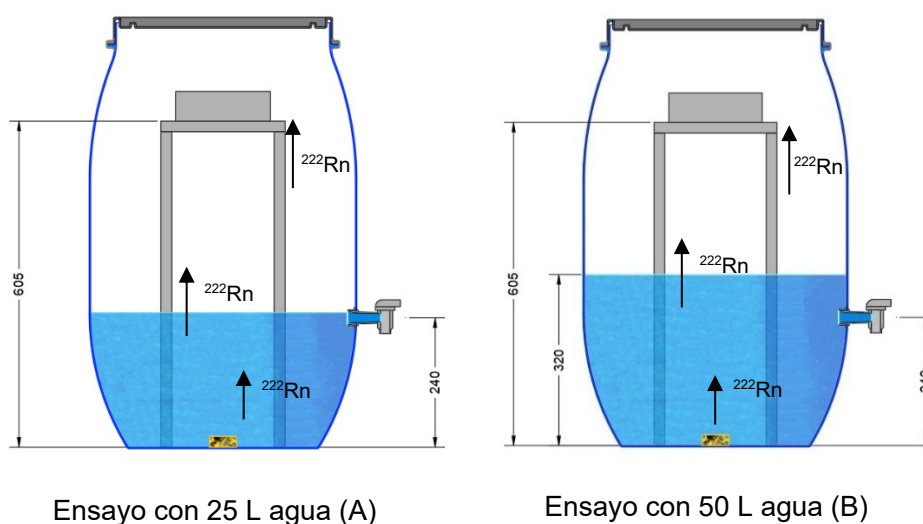


Figura 6.9. Equipo experimental dimensionado para la determinación del efecto del volumen de agua en los niveles de radón. (A) 25 L de agua. (B): 50 L de agua.

Los dos volúmenes de agua, 25 y 50 L, permiten determinar el efecto del volumen de agua sobre los niveles de radón en el medio acuoso. En ambos casos, el agua se encuentra en estado estático, sin agitación. Los niveles de radón en agua se han analizado mediante el detector Hidex 600 SL, extrayendo una alícuota de 8 mL de muestra y mezclándola con 12 mL de líquido de centelleo, ya introducido en el vial de Teflón, tal y como está descrito en el Capítulo 4. .

Siguiendo el mismo procedimiento que en los ensayos preliminares, la muestra de agua debe insertarse en el seno del centelleador, evitando la formación de burbujas de aire que supongan un camino preferencial para el radón. Se agita el vial durante 1 minuto y se espera 3 horas antes de empezar su recuento. El tiempo de medida de cada vial en el detector es de nuevo 1800 s, valor que ha de tenerse en cuenta para la corrección de la actividad.

La determinación de la concentración de radón en aire se ha llevado a cabo mediante el detector Radon Scout Plus. Una vez introducida la fuente y el agua, justo antes de cerrar herméticamente el tanque, se emplaza el detector sobre el soporte y se enciende mediante la pestaña *Run*. El intervalo de muestreo para estos ensayos es de 60 minutos, seleccionado de forma previa a través del software *Radon Vision*.

Antes y después de cada ensayo el detector debe ser purgado, en un espacio libre de radón, durante al menos 24 horas para eliminar posibles impurezas y restos de los descendientes del radón en el interior.

La purga debe prolongarse hasta que los niveles de radón medidos se sitúen entorno a los 50-60 Bq·m⁻³, valor de fondo en el laboratorio. El resumen de las características principales de los ensayos se muestra en la Tabla 6.6.

Tabla 6.6. Resumen características del procedimiento experimental de la acumulación de radón en agua en estado estático.

Características procedimiento: análisis de la acumulación de radón en agua estática	
Detector	Hidex 600 SL
Tipo de medida	Centelleo líquido
Medio analizado	Agua
Duración ensayo	101 horas (25 L) 115 horas (50 L)

Resultados

En este apartado se presentan los resultados obtenidos para la concentración de radón en agua acumulada en el interior del tanque, tanto para 25 como para 50 L.

En la Figura 6.10 se muestran los resultados obtenidos en las mediciones de radón en agua en el interior del tanque para los ensayos realizados con 25 L y 50 L.

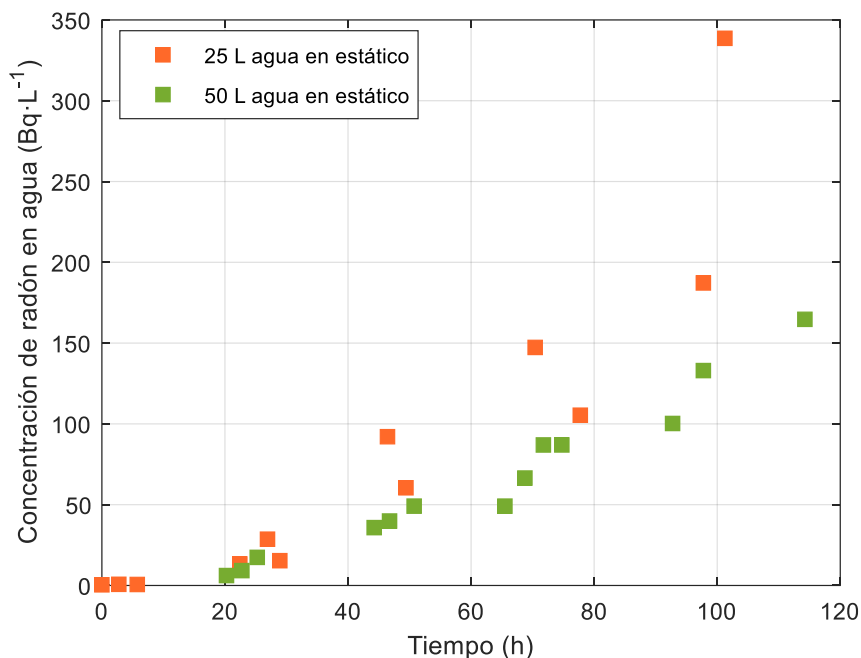


Figura 6.10. Comparación de la concentración de radón en agua medida durante el enriquecimiento para volúmenes de 25 y 50 L de agua en estático en el interior del tanque.

Para un volumen de 25 L, y después de 101.25 horas desde la introducción de la fuente en el tanque, la concentración de radón en agua alcanzada es de $(338.63 \pm 33.8 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1})$. En el segundo ensayo, para 50 L de agua, y un tiempo de 114.25 horas, el enriquecimiento de radón es inferior, alcanzando una concentración de $(164.71 \pm 16) \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$. En ambos casos el comportamiento del gas radón sigue una tendencia de crecimiento similar a investigaciones previas (Celaya, 2018).

Inicialmente, la concentración medida es muy similar en ambos casos y, por tanto, el agua se enriquece en una misma proporción. Sin embargo, entre las 40 y las 50 horas se observa una diferencia, siendo la concentración en 25 L de agua es de 1.6 veces superior a la de 50 L. La diferencia entre ambos ensayos se agudiza a partir de las 80 horas, donde prácticamente se duplica el valor de concentración de radón en agua cuando el volumen del interior del tanque es de 25 L frente a la medida en 50 L. Se observa que, en unas mismas condiciones de ensayo, a partir de las 50 horas, la concentración de radón en 25 L de agua es aproximadamente el doble que en 50 L, lo que corresponde a una ratio igual a la de los respectivos volúmenes de agua.

6.3.2. Análisis del decaimiento de radón en agua

En este apartado se analiza la disminución de la concentración de radón en agua previamente enriquecida.

Procedimiento experimental

Todas las medidas de radón se han llevado a cabo en el tanque de polietileno de alta densidad de 120 L. Los ensayos se han realizado considerando 25 L de agua en estado estático del agua.

Inicialmente, se ha enriquecido el agua mediante la fuente F2, se retira la fuente y se analiza la disminución del radón en el medio acuoso, causada por su desintegración radiactiva. En la siguiente Figura 6.11 se muestran el esquema del equipo experimental utilizado cuando el agua se encuentra en estado estático.

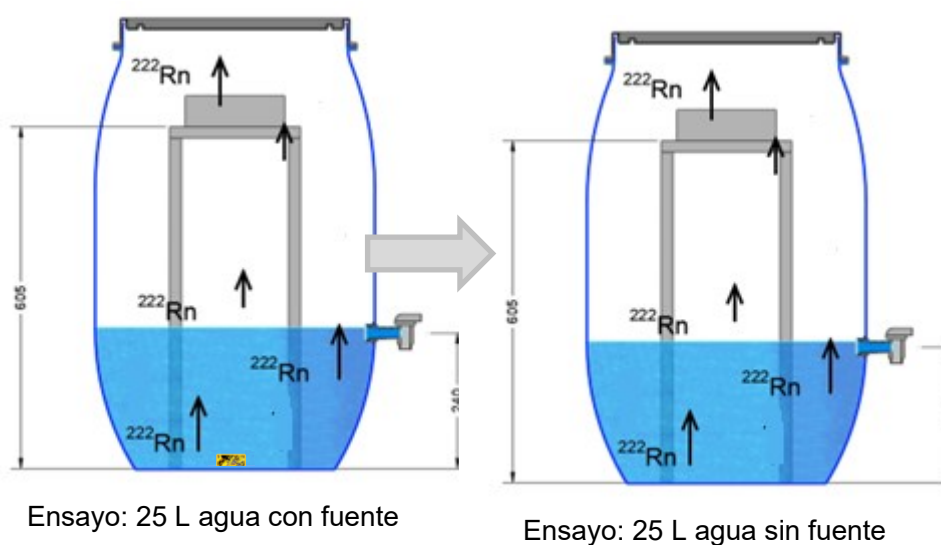


Figura 6.11. Equipo experimental dimensionado para el análisis del decaimiento del gas radón con agua en estado estático. Ensayo: 25 L con fuente. Ensayo: 25 L agua sin fuente.

Se extrae una muestra de agua mediante el grifo, tal y como se ha explicado anteriormente. Los 8 mL de agua se insertan en el vial de Teflón, justo por debajo del líquido de centelleo, evitando la formación de burbujas. Se agita 1 minuto y se analiza en el detector Hidex 600 SL pasadas 3 horas, hasta que el radón alcance el equilibrio con sus descendientes.

Las características técnicas de los ensayos llevados a cabo se muestran en la Tabla 6.7.

Tabla 6.7. Resumen características procedimiento experimental decaimiento de radón en agua estática.

Características procedimiento: análisis de la acumulación de radón en agua estática	
Detector	Hidex 600 SL
Tipo de medida	Centelleo líquido
Medio analizado	Agua
Duración ensayo	78 horas (25 L)

Resultados

A continuación, se presentan los valores de concentración de radón en agua analizados durante el decaimiento cuando se dispone de 25 L de agua en estado estático en el interior del tanque.

En este ensayo se ha enriquecido la muestra de 25 L de agua hasta una concentración de $(355 \pm 35.5) \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$. En este instante se retira la fuente generadora de radón y empieza el decaimiento del medio acuoso durante casi 78 horas, disminuyendo la concentración hasta los $(75.83 \pm 7.58) \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, tal y como se muestra en la Figura 6.12

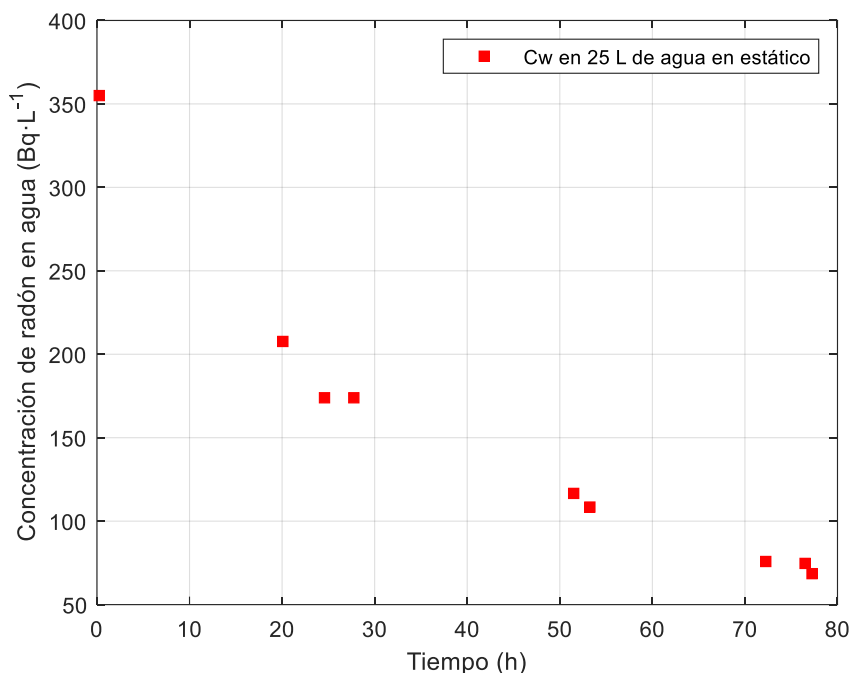


Figura 6.12. Concentración de radón en agua para decaimiento del radón en agua en estado estático.

A partir de los resultados experimentales, se analiza la velocidad a la que decae el radón, y por tramos se observa que inicialmente, hasta las 20 horas, la pendiente es mucho más pronunciada y se produce una mayor disminución de la concentración, mientras que entre las 20 y las 30 horas prácticamente no varía. De igual manera sucede entre las 50 y las 55 horas de exposición, cuya disminución es inferior al 7%. Finalmente, entre las 72 y las 78 horas, sigue decayendo el radón con una tendencia más suave.

Esta tendencia de decaimiento coincide también con investigaciones previas sobre las descargas de los acuíferos en los que en pocas horas se reduce la concentración de radón en agua (Celaya, 2018).

6.3.3. Discusión de resultados

En el primer bloque de ensayos se ha analizado el efecto del volumen de agua (25 y 50 L) sobre los niveles de radón en el interior del equipo experimental durante el proceso de enriquecimiento de la muestra acuosa.

Este proceso se lleva a cabo a partir de la fuente generadora F2. Todas las muestras de radón en agua se han medido con el detector Hidex 600 SL.

Se observa que, pese a enriquecerse de forma similar durante las primeras horas de exposición, se produce un incremento mayor de la concentración de radón en agua cuanto menor es el volumen del medio. Se verifica que, a doble de volumen, la concentración de radón en agua es menor, aproximadamente la mitad.

Posteriormente, se ha analizado la disminución de la concentración de radón en 25 L de agua estática enriquecida. Se observa un decaimiento más pronunciado durante las primeras horas de ensayo.

6.4. Determinación de la concentración de radón en aire. Ensayos con agua en estado estático

En estos ensayos se monitoriza la acumulación de la concentración de radón en aire, a partir de su liberación desde el agua.

6.4.1. Análisis de la acumulación de radón en aire

Procedimiento experimental

El montaje experimental utilizado se ha detallado en el apartado anterior 7.3.1. El agua se enriquece debido a la emisión de la fuente F2 y el radón se va liberando al aire contenido en el interior del depósito. Como este se encuentra sellado herméticamente y no hay intercambio de aire con el exterior, se produce la acumulación de gas radón en el aire.

La medida de la concentración de radón en aire se ha llevado a cabo mediante el detector Radon Scout Plus. En este caso, una vez introducida la fuente y el agua, justo antes de cerrar herméticamente el tanque, se emplaza el detector sobre el soporte y se enciende mediante la pestaña *Run*. El intervalo de muestreo para estos ensayos es de 60 minutos, seleccionado de forma previa, a través del software *Radon Vision*.

Antes y después de cada ensayo, el detector debe ser purgado, con mediciones en un espacio libre de radón durante al menos 24 horas, para eliminar posibles impurezas y restos de los descendientes del radón en el interior. La purga debe prolongarse hasta que los niveles de radón medidos se sitúen entorno a los $50 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, valor considerado como fondo en el laboratorio.

El resumen de las características principales de los ensayos se muestra en la Tabla 6.8.

Tabla 6.8. Resumen características del procedimiento experimental del estudio del radón en aire en condiciones de agua estática

Características procedimiento: análisis de la acumulación de radón en aire liberado desde agua estática	
Detector	Radon Scout Plus
Tipo de medida	Difusión
Medio analizado	Aire
Duración ensayo (volumen de agua)	117 horas (25 L) 114 horas (50 L)

Resultados

A continuación, se muestran los valores de concentración de radón en aire, medidos mediante el detector Radon Scout Plus.

Las mediciones de radón en aire para 25 L de agua se han prolongado durante 117 horas y se ha alcanzado una concentración de $(3.04 \pm 0.030) \cdot 10^4$ Bq·m⁻³. Para un volumen de 50 L de agua, pasadas las 114 horas, el valor de concentración acumulado en el interior del tanque es de $(2.65 \pm 0.026) \cdot 10^4$ Bq·m⁻³. Estos resultados experimentales se muestran en la Figura 6.13.

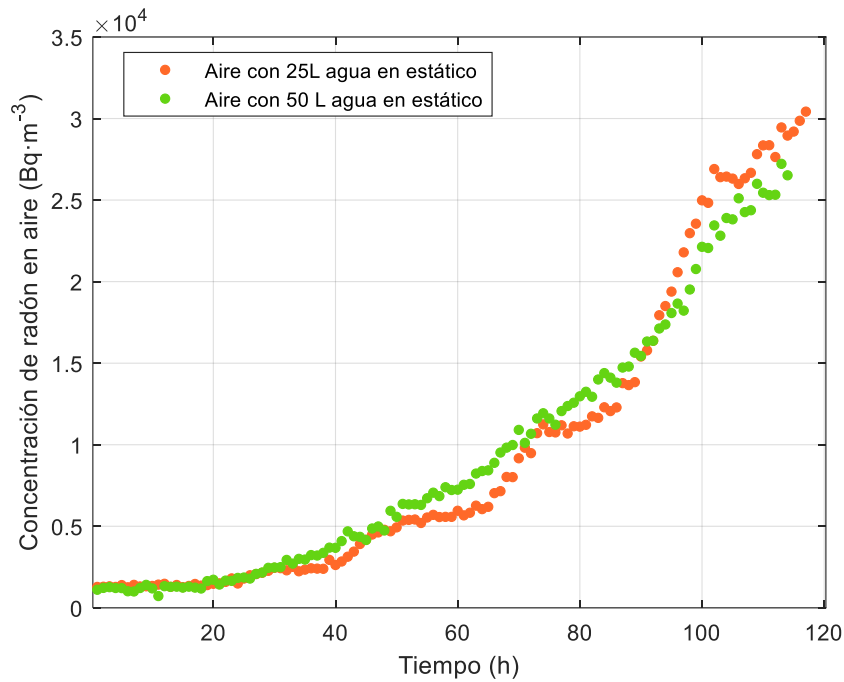


Figura 6.13. Comparación de la concentración de radón en aire creciente medida para volúmenes de 25 y 50 L de agua en estático en el interior del tanque.

Las concentraciones medidas en ambos casos presentan diferencias muy pequeñas. Esto podría deberse a que, aunque en el primer caso, el volumen de agua (25 L) es la mitad, en ese mismo depósito, el volumen de aire es mayor y su acumulación es más lenta. El volumen de agua y aire se compensan dando lugar a concentraciones similares en los dos ensayos.

Si se analiza la variación de las concentraciones, se observa que durante las primeras 17 horas de muestreo, la diferencia en ambos ensayos oscila en un 15% prácticamente en todo el ensayo. En ambos casos e independientemente del volumen de agua utilizado, la concentración de radón en aire sigue una misma tendencia creciente.

En este caso, el crecimiento no se produce con la misma tendencia que en el apartado anterior en el que únicamente se disponía de aire en el interior del bidón debido al efecto del agua. La pendiente es más suave y los resultados son difícilmente comparables con otros estudios dado que son ensayos experimentales con unas condiciones muy específicas de volúmenes (agua y aire).

6.4.2. Análisis del decaimiento de radón en aire

En este apartado se analiza la concentración de radón en aire liberado desde el agua, antes y después de extraer la fuente que lo genera. Los niveles en aire se incrementan mientras la piedra pechblenda está en el interior del depósito, pero una vez retirada, los valores de concentración son debidos al radón residual del medio acuoso. A continuación, se detalla el proceso de disminución y decaimiento de este gas.

Procedimiento experimental

Para las mediciones de radón en aire se utiliza el detector Radon Scout Plus, ubicado en el soporte metálico, sobre la fuente F2 generadora de radón, tal y como se muestra en la Figura 7.8.

Tal y como se ha explicado en el apartado 7.1., los ensayos se llevan a cabo únicamente con 25 L, ya que requieren tiempos experimentales de ensayo menores.

Las características técnicas de los ensayos llevados a cabo se muestran en la Tabla 6.9.

Tabla 6.9. Resumen características del procedimiento experimental del análisis del proceso de decaimiento y disminución de la concentración de radón en aire.

Características procedimiento: análisis de la acumulación de radón en aire liberado desde agua estática	
Detector	Radon Scout Plus
Tipo de medida	Difusión
Medio analizado	Aire
Duración ensayo	76 horas (25 L)

Resultados

En la Figura 6.14 se muestran los resultados obtenidos durante un primer enriquecimiento y posterior disminución de la concentración de radón en aire cuando en el interior del depósito hay 25 L de agua en estado estático.

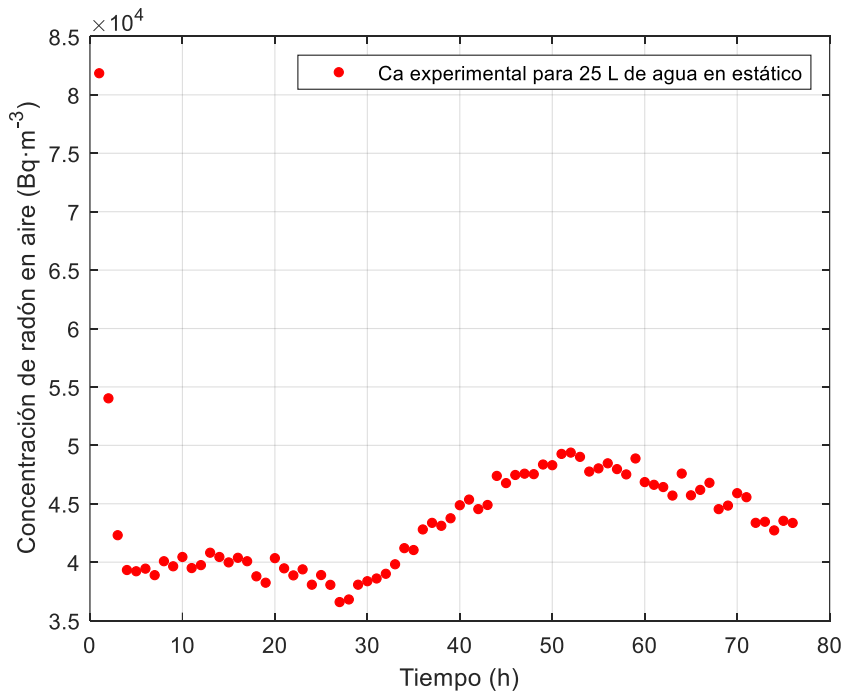


Figura 6.14. Concentración de radón en aire para enriquecimiento y decaimiento del radón en agua en estado estático.

En esta figura se muestra el proceso de decaimiento del radón en aire en el interior del bidón con 25L de agua enriquecida en estático. Inicialmente, la concentración es de $(8.18 \pm 0.82) \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, debido a la transferencia que se ha estado produciendo durante el enriquecimiento del agua. Posteriormente, se observa una fuerte caída debido a la apertura del bidón y a la retirada de la fuente.

La disminución se produce hasta las 30 horas, momento en el cual se evidencia un pequeño crecimiento del nivel de radón en aire, alcanzando los $(4.88 \pm 0.49) \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, debido al radón residual que se sigue liberando desde el agua.

Hasta finalizar el ensayo a las 76 horas, el efecto de la transferencia del radón del agua al aire es menor que el del propio decaimiento del radón, por lo que la concentración disminuye hasta $(4.33 \pm 0.43) \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

6.4.3. Discusión de resultados

Inicialmente, se ha analizado el efecto del volumen de agua (25 L y 50 L) en condiciones estáticas en los niveles de radón en aire en el interior del montaje experimental. Las mediciones se han llevado a cabo mediante el detector Radon Scout Plus.

Se ha observado una tendencia a la acumulación de radón en aire muy similar para ambos volúmenes de agua. Para una misma fuente, que emite la misma cantidad de radón, se compensa la relación entre el volumen de agua, que es el doble, con el volumen de aire, que es un % menor. Es decir, para 25 L, pese a que el volumen es exactamente la mitad de los 50 L, también hay una mayor cantidad de aire, por lo que el gas radón tarda más en acumularse. El volumen de agua y el de aire se compensan dando lugar a concentraciones similares para ambos ensayos de 25 y 50 L.

Posteriormente, se ha analizado el comportamiento del gas radón en aire en los procesos de decaimiento cuando se dispone de 25 L de agua estática.

Una vez retirada la fuente, cuando el agua ya está enriquecida, se produce una caída brusca del nivel de radón en aire debido a la apertura del tanque para extraer la fuente, y, posteriormente, un ligero incremento de la concentración, debido al efecto de la liberación del radón residual que queda en el agua estática. Como ya no hay fuente que aporte radón al agua, la concentración disminuye tanto en el medio acuoso como en el aire.

6.5. Determinación de radón en agua. Ensayos con agua en agitación

En este ensayo se analiza la concentración de radón en agua cuando esta se encuentra en agitación, tanto en el proceso de acumulación como en decaimiento. Se comparan los resultados con condiciones estáticas para determinar el efecto que tiene la turbulencia en la acumulación de gas radón.

6.5.1. Análisis de la acumulación de radón en agua

En este apartado se presentan y analizan los resultados obtenidos de radón en agua cuando esta se encuentra en agitación durante el proceso de enriquecimiento y acumulación en el medio acuoso.

Procedimiento experimental

Estos ensayos se basan en medir la concentración de radón en agua para los volúmenes de 25 L y 50 L cuando se dispone de una bomba modelo MGZ3200 que genera una agitación del agua.

Las mediciones se llevan a cabo en el interior del tanque de 120 L, empleando la fuente F2 de 4.27 ± 0.27 kBq de actividad. El muestreo se basa en la extracción de 8 mL de agua, a través del grifo y se inserta en el vial de teflón, que ya contiene líquido de centelleo. Se agita durante 1 minuto para homogeneizar la muestra y 3 horas después se inicia la medida en el detector Hidex 600 SL.

El montaje experimental para el análisis de radón en agua es el mismo que en apartados anteriores, incluyendo una bomba conectada a la red eléctrica. La velocidad de agitación se mantiene constante durante todos los ensayos. La duración de los ensayos varía en función de volumen de agua a analizar.

El esquema del montaje se muestra en la en la Figura 6.15.

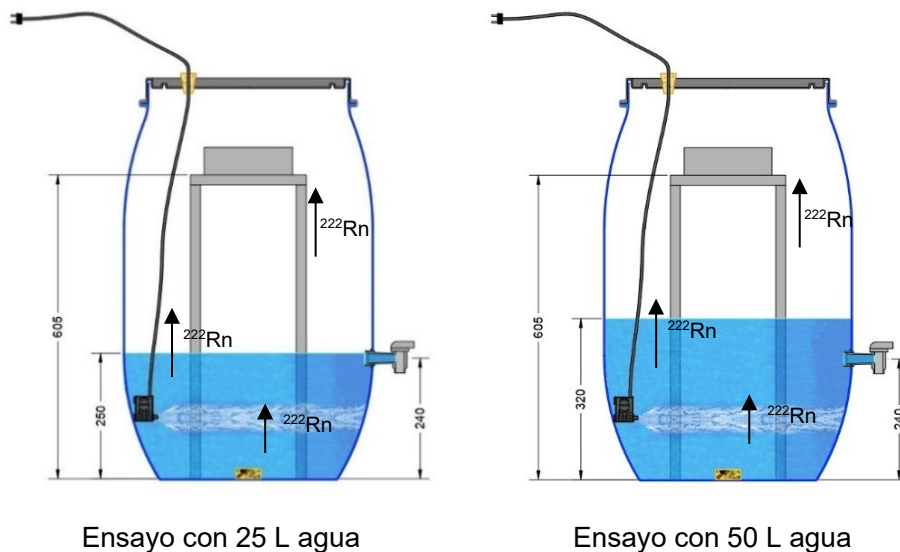


Figura 6.15. Equipo experimental dimensionado para la determinación del efecto del estado del agua en los niveles de radón. Ensayo con 25 L de agua. Ensayo 50 L de agua.

Las características técnicas de los ensayos llevados a cabo se muestran en la Tabla 6.10.

Tabla 6.10. Resumen características procedimiento experimental para el análisis del enriquecimiento del agua en estado turbulento

Características procedimiento: análisis de la acumulación de radón en agua en agitación	
Detector	Hidex 600 SL
Tipo de medida	Centelleo líquido
Medio analizado	Agua
Duración ensayo	261 horas (25 L) 94 horas (50 L)

Resultados

En este apartado se presentan todos los resultados obtenidos en el estudio del efecto que tiene el estado del agua sobre los niveles de radón en agua.

En la Figura 6.16 se representan los valores experimentales de concentración de radón en agua cuando esta se encuentra en agitación, tanto para ensayos de 25 L de volumen como 50 L.

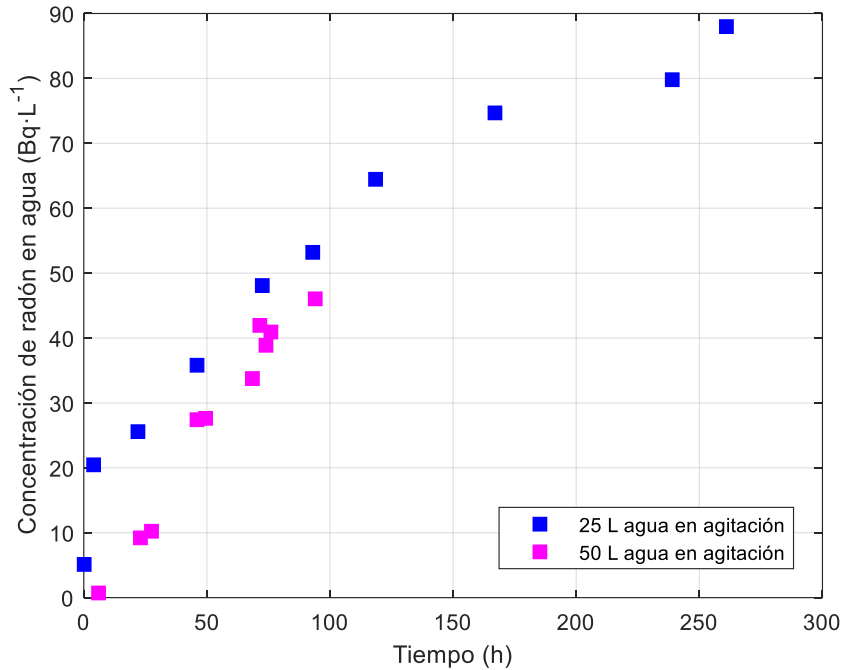


Figura 6.16. Comparación de la concentración de radón en agua en volúmenes de 25 L y 50 L en agitación.

Los ensayos realizados con un volumen de 25 L de agua, tal y como se muestra en la figura anterior, se han prolongado hasta las 261 horas y se ha alcanzado una concentración de $(87.98 \pm 8.78) \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$. Para un volumen de agua de 50 L y un tiempo de ensayo de 94 horas, la concentración en agua alcanzada es de $(46.04 \pm 4.60) \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$.

Inicialmente y hasta las 50 horas, la concentración en 25 L de agua en agitación es en torno a 2.5 veces mayor que la de 50 L. Posteriormente, la relación entre concentraciones disminuye, con una ratio 2:1, hasta finalizar el ensayo. Los últimos valores obtenidos, y la tendencia observada en la figura anterior sugieren que la diferencia de concentraciones podría disminuir, debido al efecto de la agitación del agua, que permitiría una homogeneidad de la concentración de radón en agua, además de facilitar su liberación al aire.

6.5.2. Análisis del decaimiento de radón en agua

En este apartado se analiza la concentración de radón en agua una vez se ha retirado la fuente generadora de radón y el proceso que rige el comportamiento del gas es su propio decaimiento.

Procedimiento experimental

Los ensayos de radón en agua se llevan a cabo en el mismo montaje experimental que casos anteriores, utilizando la fuente F2 y para un volumen de agua de 25 L. En este caso, de igual manera que para los ensayos en estático, únicamente se han utilizado 25 L de agua y no 50 L por las cuestiones operativas ya comentadas (tiempo experimental requerido excesivo). La fuente F2 permite el enriquecimiento del agua y cuando se alcanza un valor de concentración alto, como mínimo 10 veces superior a los valores de agua potable, se extrae la fuente y se analiza el decaimiento de la concentración de radón en agua.

El dimensionado y los elementos que conforman la segunda parte de los ensayos de análisis del decaimiento se muestran en la siguiente Figura 6.17

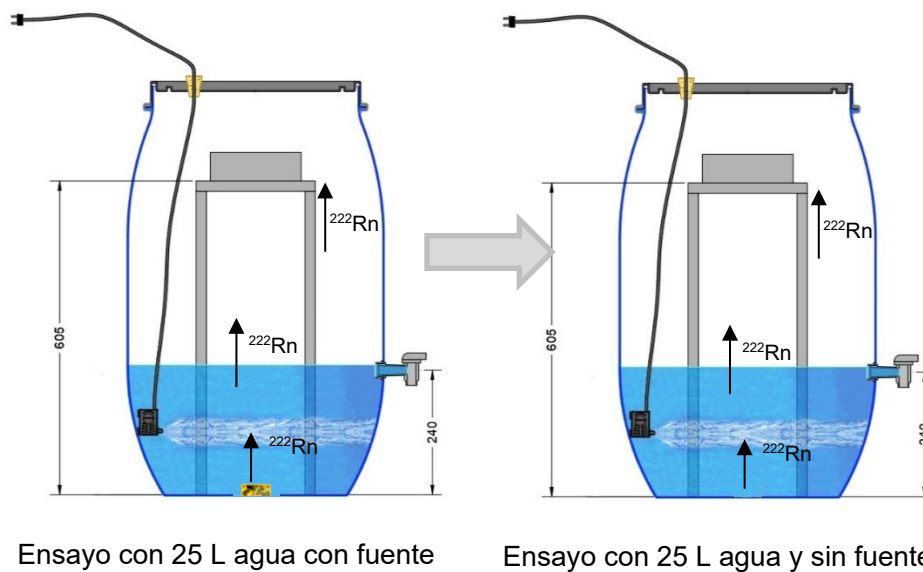


Figura 6.17. Equipo experimental dimensionado para el análisis del decaimiento del gas radón con agua en agitación. Ensayo con 25 L con fuente. Ensayo con 25 L de agua y sin fuente.

La toma de muestras de agua se lleva a cabo a través de su extracción mediante el grifo A, según se muestra en las figuras anteriores. Los 8 mL de agua se insertan en el vial de Teflón, justo por debajo del líquido de centelleo, evitando la formación de burbujas. Se agita durante 1 minuto y se analiza en el detector Hidex 600 SL. Se debe esperar 3 horas antes de su medición, hasta que el radón alcance el equilibrio con sus descendientes.

Las características técnicas de los ensayos llevados a cabo se muestran en la Tabla 6.11.

Tabla 6.11. Resumen características procedimiento experimental del estudio del decaimiento de la concentración de radón en agua en agitación

Características procedimiento: análisis de la acumulación de radón en agua en agitación	
Detector	Hidex 600 SL
Tipo de medida	Centelleo líquido
Medio analizado	Agua
Duración ensayo	≈ 55 horas (25 L)

Resultados

A continuación, se presentan los valores de concentración de radón en agua analizados cuando se dispone de 25 L de agua en agitación en el interior del tanque. Los resultados de concentración de radón en agua se muestran en la Figura 6.18.

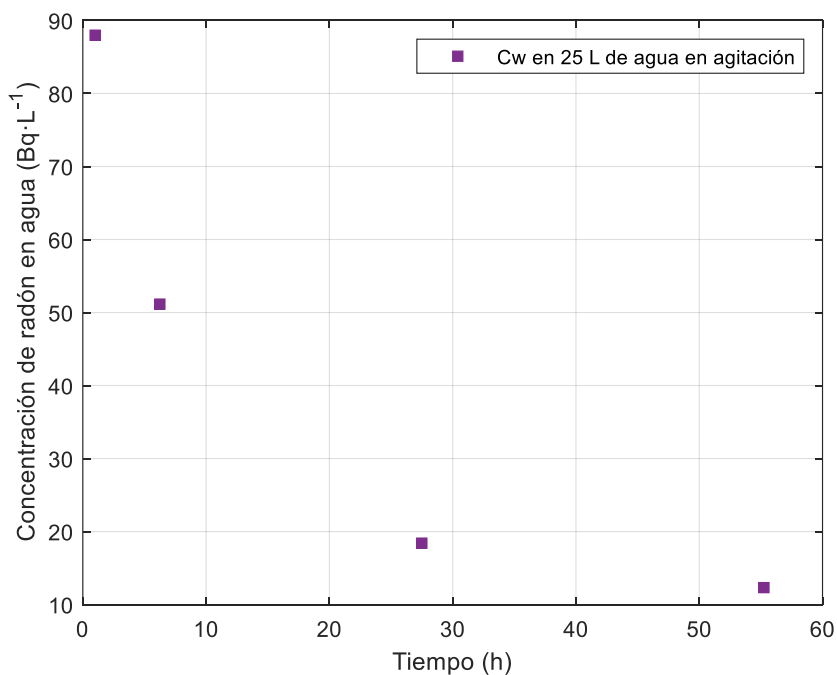


Figura 6.18. Concentración de radón en agua para decaimiento del radón en agua en estado agitación.

En la figura anterior se muestra la concentración de radón en agua cuando ésta se encuentra en agitación. Inicialmente, el agua muestreada está enriquecida, con un valor de concentración, de $87.89 \pm 8.79 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$. Una vez retirada la fuente, como no hay aporte de radón, se produce el decaimiento del mismo en el medio acuoso, hasta alcanzar los $12.32 \pm 1.23 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ a las 55.25 horas, lo que supone una disminución de más de un 60%.

Si se observa la figura anterior, se evidencia una pendiente más pronunciada entre el primer y el segundo valor muestreado, por lo que la velocidad de desintegración es mayor, mientras que esta se suaviza según transcurre el tiempo. La pendiente es mucho más suave entre las 27 y las 55 horas, cuando apenas va quedando radón en el agua.

6.5.3. Comparación de resultados de radón en agua. Agua estática vs. Agua en agitación

A continuación, se presenta una comparación entre los niveles de radón en agua para 25 L y 50 L en estado estático y en agitación durante el enriquecimiento. Los tiempos de ensayo se muestran en la Tabla 6.12.

Tabla 6.12. Resumen de las condiciones de ensayo para un volumen de 25 L de agua en estado estático y en agitación, durante el enriquecimiento.

Comparación entre estado estático y agitación		
Radón en agua	Estado agua	Tiempo ensayo
Ensayos con 25 L	Estático	221.25 h
	Agitación	261 h
Ensayos con 50 L	Estático	162.25 h
	Agitación	94 h

A continuación, se presentan los resultados obtenidos en los ensayos con ambos volúmenes de agua en el interior del tanque. Se compara la concentración de radón en agua cuando esta se encuentra en estado estático y cuando está en agitación.

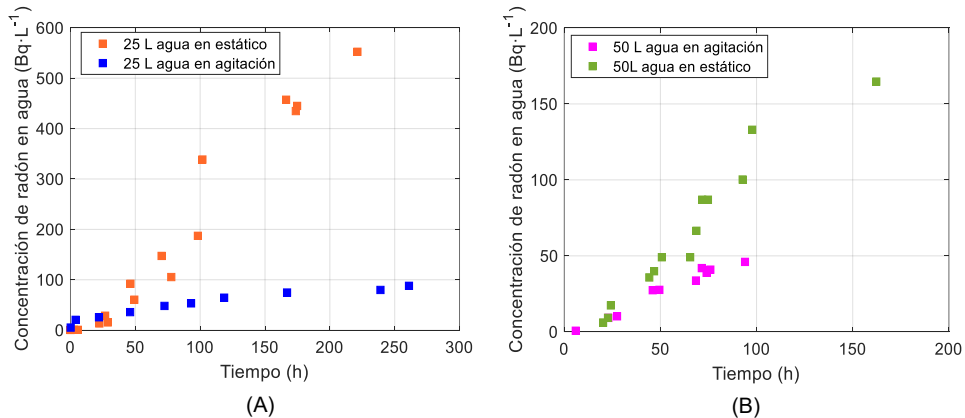


Figura 6.19. Comparación de la concentración de radón en agua en estado estático y en agitación. (A) Ensayos con 25 L de agua. (B) Ensayos con 50 L de agua

La gráfica anterior, figura (A), muestra que, para un tiempo de ensayo de 221.25 horas, la concentración de radón alcanzada cuando el agua está en estado estático es de $540 \pm 54 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$. Cuando el agua está en agitación y después de 261 horas de exposición, la concentración de radón es de $87.98 \pm 8.79 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$.

Inicialmente, la concentración de radón en 25 L en estático es 0.08 veces superior a la concentración en agitación. Esta ratio va aumentando según avanza el ensayo hasta que finaliza el ensayo y la concentración en estático es ≈ 2 veces superior a la de agitación. Esta diferencia en las concentraciones se debe al proceso de agitación del agua. Cuando esta se produce, el radón es liberado rápidamente del agua que lo contiene y se difunde en el aire. Por tanto, el proceso de turbulencia aumenta la velocidad de transferencia del radón del agua al aire y se acumula una menor cantidad en el medio acuoso.

La concentración de radón en agua para un volumen de 50 L, figura (B), cuando se encuentra en estado estático es de $164.71 \pm 16.47 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, para un tiempo de ensayo de 114.25 horas desde la introducción de la fuente en el agua. En cambio, si se introduce la bomba y el agua se encuentra agitada, la concentración crece por debajo de los $100 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ hasta estabilizarse en $92.1 \pm 16.47 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ a las 187.48 horas.

Se observa un comportamiento similar para las diferentes condiciones del agua. La concentración de radón es inferior si esta se encuentra en agitación dado que se produce el burbujeo y aireación que facilitan la liberación del gas al aire del interior del tanque. Para 50 L de agua, la concentración de radón en agua estática es, como mínimo 1.17 veces la concentración en agitación. Poco antes de las 100 horas, esta ratio asciende a 2. De nuevo se evidencia que la agitación del medio acuoso facilita su transferencia al aire, disminuyendo su acumulación en el agua.

Por último, se presenta una comparación entre los valores experimentales de radón en agua, en 25 L, en los ensayos en los que inicialmente se dispone de fuente generadora y, posteriormente, es retirada del montaje experimental.

Las condiciones de cada ensayo se muestran, a modo de resumen, en la Tabla 6.13.

Tabla 6.13. Resumen de las condiciones de ensayo para un volumen de 25L de agua en estado estático y en agitación incluyendo decaimiento.

Ensayos de radón en 25 L de agua		
Estado del agua	Tiempo total de ensayo	Tiempo ensayo decaimiento
Estática	338 h	96 h
Agitación	332 h	71 h

A continuación, en la Figura 6.20, se recogen los valores experimentales obtenidos, representando sólo la parte de decaimiento (sin considerar el efecto de la apertura del tanque para la retirada de la fuente).

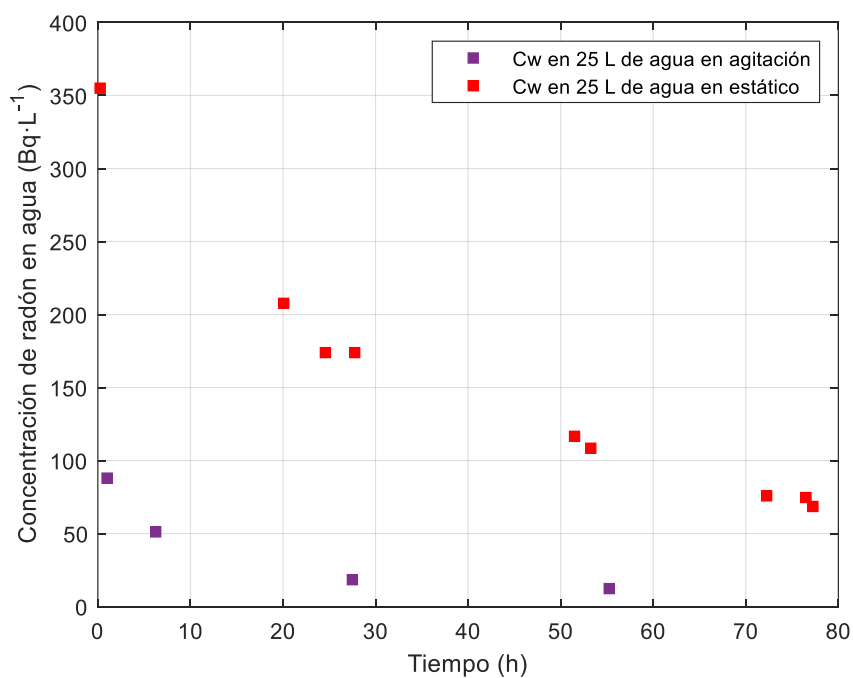


Figura 6.20. Comparación de la concentración de radón en 25 L de agua en estado estático y agitación durante el proceso de decaimiento.

Tal y como se observa, la concentración de radón en agua en condiciones de agitación es inferior al estado estático. El efecto de la turbulencia disminuye la acumulación de radón en el medio acuoso dado que se produce su aireación y, por lo tanto, una mayor liberación del gas al aire.

Inicialmente, la concentración de radón en agua estática es 4 veces superior a la muestra en agitación. Posteriormente, para tiempos similares, entre 27 y 28 horas y entre 53 y 55 horas, esta ratio aumenta, y el valor de la concentración de radón en agua estática es 9 veces superior.

Se evidencia que, en condiciones de agitación, la acumulación de radón en agua es inferior debido al proceso de turbulencia, que crea burbujas de aire y facilita el transporte del gas radón hacia el aire.

Estos ensayos pueden compararse con resultados obtenidos en las descargas rápidas y lentas de acuíferos (Celaya, 2018), en los que la concentración decae de forma más lenta cuanto menor agitación presenta la muestra de agua.

6.5.4. Discusión de resultados

En este estudio se ha analizado el proceso de enriquecimiento y acumulación de radón en agua en agitación para volúmenes de 25 y 50 L, y la acumulación y decaimiento del radón para un volumen de 25 L de agua en estado turbulento.

Inicialmente, durante el proceso de enriquecimiento se observa que con un volumen inferior de agua (25 L frente a 50 L) se produce una mayor acumulación de radón en aire.

En el segundo de los ensayos, analizando la acumulación y decaimiento del radón en agua, se observa que, una vez retirada la fuente, la concentración se reduce prácticamente a la mitad en menos de un día, coincidiendo con el valor en el momento inicial de los ensayos.

Comparando la concentración de radón en agua estática y en agitación para un mismo volumen ensayado (25 o 50 L), se verifica que los niveles son mayores cuando el agua se encuentra en estado estático. El burbujeo y agitación disminuyen la acumulación del radón en el agua y favorecen su liberación al aire.

Por último, analizando la disminución de la concentración, en 25 L de agua en estático y agitación se observa que cuando el agua está agitada la acumulación de radón es hasta 9 veces inferior.

6.6. Determinación de la concentración de radón en aire. Ensayos con agua en agitación

Una vez analizada la concentración de radón en agua en el interior del equipo experimental, se estudia el comportamiento de este gas en aire, para las mismas condiciones de ensayo detalladas en el apartado 7.5.1.

6.6.1. Análisis de la acumulación de radón en aire

El análisis del proceso de acumulación de radón en aire se basa en monitorizar su concentración a partir de la liberación de gas desde el medio acuoso, que se encuentra en agitación.

Procedimiento experimental

El radón en aire se analiza mediante el detector Radon Scout Plus, ubicado en el soporte metálico, sobre la fuente F2, generadora de radón. El montaje experimental se muestra en la Figura 6.15. El detector toma muestras de aire cada 60 minutos, de forma continua.

En la Tabla 6.14. se muestran las características técnicas de los ensayos llevados a cabo.

Tabla 6.14. Resumen características procedimiento experimental del análisis de la acumulación de radón en aire en contacto con agua en agitación

Características procedimiento: análisis de la acumulación de radón en aire liberado desde el agua en agitación	
Detector	Radon Scout Plus
Tipo de medida	Difusión alfa
Medio analizado	Aire
Duración ensayo	260 horas (25 L) 95 horas (50 L)

Resultados

Los resultados experimentales de radón en aire para 25 y 50 L en agitación se muestran en la Figura 6.21.

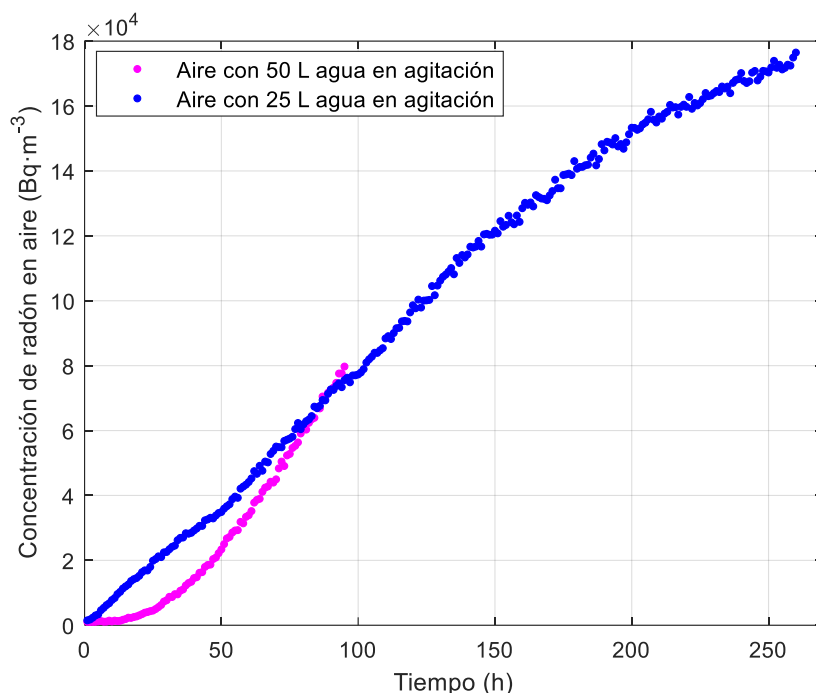


Figura 6.21. Concentración de radón en aire en 25 y 50 L de agua en agitación.

Tal y como se observa en la figura anterior, la concentración de radón en aire cuando se dispone de 50 L de agua en agitación en el montaje experimental alcanza $(87.94 \pm 0.08) \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ a las 95 horas de ensayo. Cuando el volumen de agua del ensayo es menor, 25 L, la concentración de radón alcanza un valor de $(7.56 \pm 0.075) \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ para ese mismo tiempo de 95 horas. Dado que este muestreo se prolonga hasta las 260 horas, el radón acumulado supone una concentración de $(1.76 \pm 0.017) \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$. En ambos casos se observa una tendencia creciente debido a la liberación de radón desde el agua, que se acumula en el aire del interior del tanque.

Estos resultados son coherentes comparados con otras investigaciones en las que se dispone también de una corriente de bombeo continua y donde se produce la desgasificación del depósito de agua al aire de manera ilimitada (Schmidt et al., 2008). Generalmente, cuanto mayor sea el caudal de agua,

menos tiempo se requiere para alcanzar el equilibrio de concentración de radón en agua y en aire (Schmidt et al., 2008).

En los ensayos experimentales llevados a cabo en este caso y dado el elevado volumen de agua utilizado, la concentración de radón en aire sigue creciendo y no se puede conseguir este equilibrio.

La tendencia de acumulación en la concentración de radón en aire es ligeramente similar a cuando únicamente se dispone de aire en el bidón debido a que la agitación del agua favorece su liberación y transferencia.

6.6.2. Análisis del decaimiento de radón en aire

A continuación, se presentan los resultados de concentración de radón en aire cuando se dispone de 25 L de agua en agitación, una vez se ha retirado la fuente generadora y el proceso de decaimiento rige las condiciones de ensayo.

Procedimiento experimental

El ensayo de radón en aire se realiza siguiendo el montaje experimental de la Figura 6.17. Inicialmente, la fuente de radón se deposita en el fondo del depósito y se rellena con 25 L de agua, que se irá enriqueciendo. Se añade una bomba, que permite la agitación constante de agua, y se ubica el detector de radón en el aire sobre el soporte metálico. El detector Radon Scout Plus tomará muestras de aire cada 60 minutos, ofreciendo la concentración de radón en aire en el interior del equipo experimental.

Una vez enriquecida el agua, se extrae la fuente y se sigue analizando la concentración de radón en aire en el interior del depósito. En este caso, las mediciones permiten determinar la cantidad de radón en aire que decae en función del tiempo de ensayo.

Las características técnicas de los ensayos llevados a cabo se muestran en la Tabla 6.15.

Tabla 6.15. Resumen características del procedimiento experimental del estudio del decaimiento de la concentración de radón en aire en contacto con agua en agitación

Características procedimiento: análisis de la acumulación de radón en aire liberado desde el agua en agitación	
Detector	Radon Scout Plus
Tipo de medida	Difusión alfa
Medio analizado	Aire
Duración ensayo	50 horas (25 L)

Resultados

La concentración de radón en aire en el interior del depósito para un volumen de 25 L de agua en agitación se muestra en la Figura 6.22.

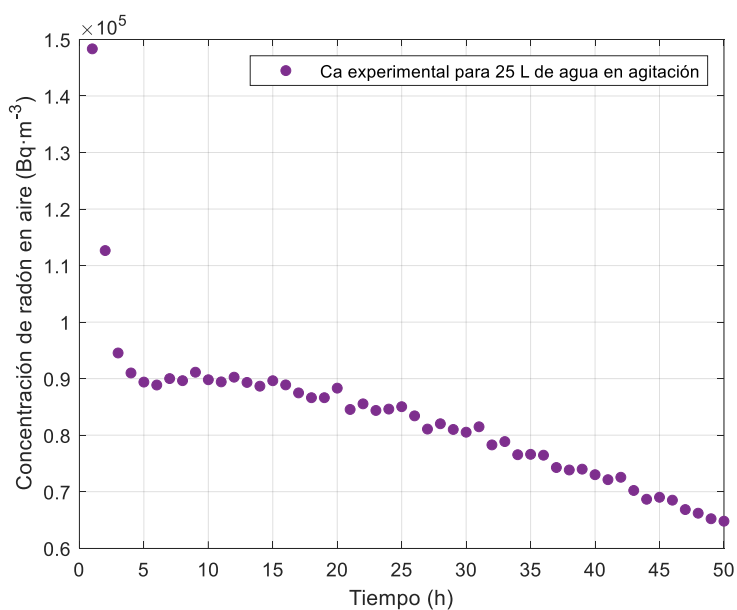


Figura 6.22. Concentración de radón en aire para enriquecimiento y decaimiento del radón en agua en estado de agitación.

En la figura anterior se observa una disminución de la concentración de radón en aire cuando en el interior del depósito hay 25 L de agua en agitación. El agua enriquecida libera radón al aire, que se va acumulando hasta alcanzar una concentración de radón en aire de $(1.48 \pm 0.0015) \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, momento en que se abre el depósito y se inicia el proceso de decaimiento.

Durante las tres primeras horas se observa una caída brusca de la concentración, debido a que, en la apertura del tanque, parte del radón contenido en su interior es liberado al exterior. Posteriormente, se estabiliza el decaimiento del gas radón hasta finalizar el ensayo a las 50 horas, con una concentración de $(0.648 \pm 0.00065) \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

6.6.3. Comparación de resultados de radón en aire. Agua estática vs. Agua en agitación

A continuación, se realiza una comparativa entre los niveles de radón en aire cuando este es liberado a partir de 25 o 50 L en condiciones estáticas o de agitación del medio acuoso. Los tiempos de ensayo, para ambos volúmenes de agua, se muestran en la Tabla 6.16.

Tabla 6.16. Resumen de las condiciones de ensayo para un volumen de 25 L de agua en estado estático y en agitación.

Comparación entre estado estático y agitación		
Radón en aire	Estado agua	Tiempo ensayo
Ensayo con 25 L	Estático	162 h
	Agitación	95 h
Ensayo con 50 L	Estático	162.25 h
	Agitación	94 h

Los resultados obtenidos de medición de radón en aire en el interior del depósito, liberado desde los 25 L y 50 L de agua en agitación y estático respectivamente, se muestran en la Figura 6.23.

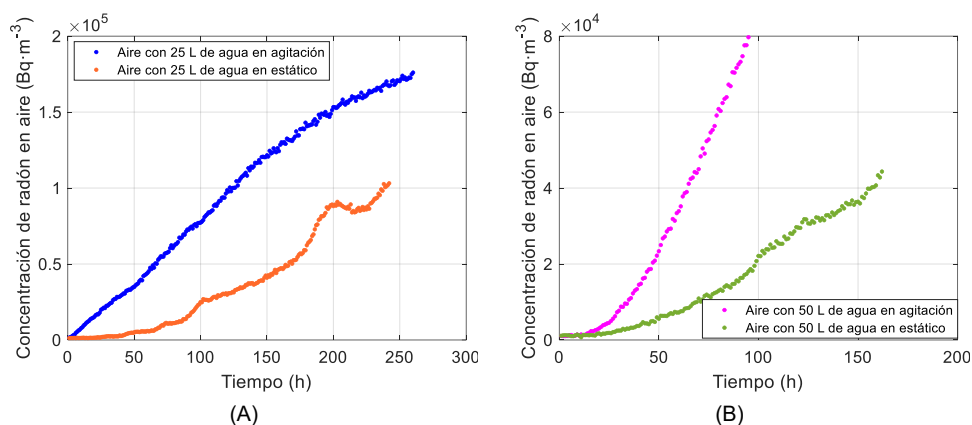


Figura 6.23. Comparación de la concentración de radón en aire cuando el agua está estática y en agitación. (A) Ensayos con 25 L de agua. (B) Ensayos con 50 L de agua.

En la gráfica (A) de la Figura 6.23 se observa que los niveles de radón en aire son superiores cuando el agua del interior del tanque está en agitación. Esto es debido a que este proceso favorece el burbujeo y la liberación del radón de un medio a otro. La concentración varía en un rango de entre 2 y 4 veces superior cuando se dispone de agua en agitación. Esto corrobora que cuanto mayor es la agitación del agua, mayor cantidad de radón se transfiere al aire.

La concentración de radón en aire para un volumen de 50 L de agua en estado estático alcanza los $(4.43 \pm 0.043) \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ en 162 horas, mientras que cuando el agua está agitada, el nivel de radón en aire en apenas 95 horas es de $(7.97 \pm 0.079) \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$. Es decir, para un volumen de agua menor, la concentración en aire es casi el doble.

De nuevo se verifica el efecto que tiene la turbulencia del agua en la acumulación de radón en aire. Comparando con la concentración en agua, se observa que, tal y como sucedía con 25 L de agua, cuando el medio acuoso está en agitación, se acumula menos radón, que se traduce en una mayor cantidad liberada al aire. Según se observa en la figura anterior, la pendiente de la concentración de radón en aire cuando el agua está en agitación es mucho más pronunciada.

Las variaciones observadas en la figura anterior pueden deberse a cambios en las condiciones atmosféricas, como la presión. Esto sucede también en diversas investigaciones en las que coexisten agua y aire (Celaya, 2018).

Por último, se comparan los resultados obtenidos de radón en aire cuando se dispone de 25 L de agua con y sin fuente generadora. Los tiempos de ensayo se muestran en la Tabla 6.17.

Tabla 6.17. Resumen de las condiciones de ensayo para un volumen de 25L de agua en estado estático y en agitación incluyendo decaimiento.

Ensayos de radón en 25 L de agua	
Estado del agua	Tiempo decaimiento aire
Estático	≈ 55 h
Agitación	50 h

En la Figura 6.24 se muestran los resultados obtenidos.

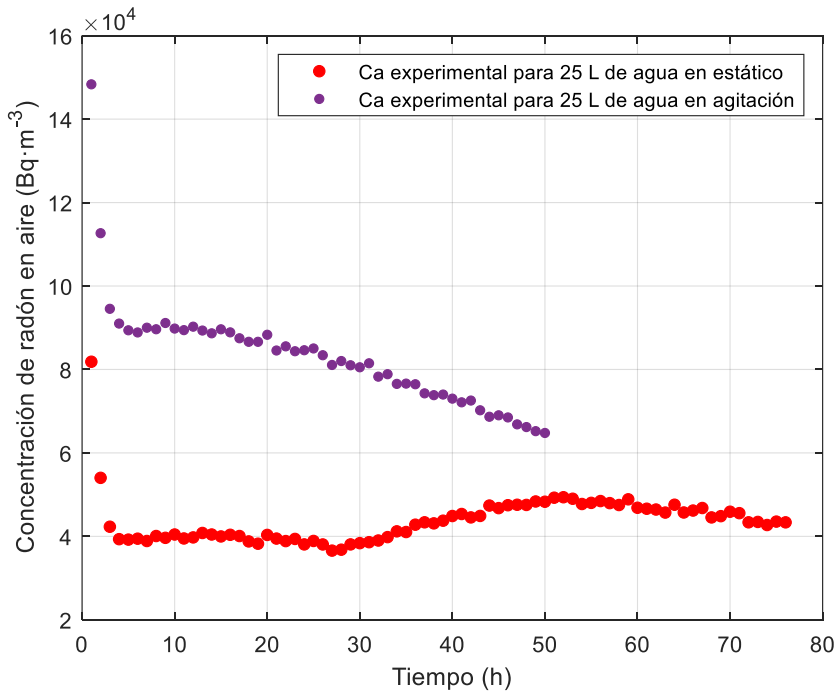


Figura 6.24. Comparación de la concentración de radón en aire con 25 L de agua en estado estático y agitación incluyendo el proceso de decaimiento.

La concentración de radón en aire, tal y como se observa en la figura anterior, es superior cuando el agua se encuentra agitada. Según lo detallado anteriormente, el proceso de turbulencia favorece la liberación del radón del agua al aire, donde tiende a acumularse.

En ambos casos, se observa una caída brusca causada por la apertura del depósito. En los ensayos con agua en estático, se observa un ligero incremento en la concentración debido al radón residual del agua que sigue liberándose al aire para posteriormente decaer. En condiciones de agua estática, la concentración de radón en aire se reduce a la mitad en menos de 5 horas mientras que en agitación, se reduce en aproximadamente 30 horas. Esto se debe a que en condiciones de turbulencia, el agua sigue liberando radón al aire y tarda más en disminuir el nivel.

Estos resultados coinciden con los obtenidos de radón en agua de la Figura 6.20. Los niveles de radón en agua en estático son mayores que cuando hay agitación dado que el gas se transfiere al aire más fácilmente.

6.6.4. Discusión de resultados

En el primer ensayo, se analiza la concentración de radón en aire, liberado desde el agua en agitación para los volúmenes de 25 y 50 L. Se observa que, inicialmente, la concentración de radón en aire para 25 L de agua es mayor debido a la liberación de gas radón desde el medio acuoso. Para tiempos de ensayo similares, las concentraciones de radón en aire en ambos casos (25 y 50 L) presentan un mismo orden de magnitud, $(7.56 \pm 0.075) \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ frente a $(7.94 \pm 0.079) \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

En el segundo ensayo, para un volumen de 25 L de agua, se han realizado las mediciones de radón en aire antes y después de retirar la fuente en condiciones de agua en agitación. Cuando se retira la fuente, se produce una caída brusca de la concentración debido a la apertura del tanque y posteriormente, una disminución paulatina de la concentración de radón en aire debido a su propio decaimiento.

Asimismo, se comparan los resultados experimentales obtenidos para 25 L y 50 L en estático y agitación y se observa que, en los ensayos en los que el agua se encuentra en movimiento, la concentración de radón en aire es entre 2 y 4 veces superior.

Por último, analizando los valores de concentración de radón en aire cuando el agua ya está enriquecida, durante el proceso de decaimiento se observa una disminución más pronunciada cuando el agua se encuentra en agitación.

6.7. Introducción al Capítulo 8: Modelización de la difusión de radón

En este capítulo se han presentado y analizado todos los resultados obtenidos en los ensayos experimentales llevados a cabo: cuando la emanación de radón desde la fuente produce su acumulación en aire y cuando enriquece el agua, desde donde se libera al aire. Se ha ensayado y estudiado el proceso de decaimiento de radón en agua y en aire cuando se extrae la fuente del bidón de HDPE.

Esta parte experimental de la investigación ofrece la posibilidad de entender cómo se acumula el gas radón en dos medios (aire y agua) y cómo disminuye en ausencia de una fuente generadora. Estos resultados se utilizan en el siguiente capítulo para analizar la transferencia del gas radón en diferentes medios (aire y agua-aire) y bajo distintas condiciones de régimen del agua: estático y agitación.

CAPÍTULO 7

PROCESAMIENTO PREVIO A LA MODELIZACIÓN DE LA DIFUSIÓN DE GAS RADÓN

El estudio de la transferencia de materia, en cualquier sistema, requiere de unos conocimientos previos acerca del comportamiento del compuesto a analizar. En este caso, se presenta una breve introducción sobre el transporte molecular y se particulariza en el estudio del comportamiento del radón en procesos de transferencia en aire y durante el intercambio agua-aire.

7.1. Introducción

La difusión o transporte molecular se define como la transferencia de las moléculas a través de un fluido mediante su movimiento individual, generado por una fuerza impulsora: presión, temperatura o gradiente de concentración. Este movimiento se produce de forma desordenada, lo que conlleva una mezcla completa a cualquier temperatura excepto cero absoluto (Rebour et al., 1997).

Los procesos de difusión molecular se aplican en diversas áreas como la nuclear (espectroscopía de resonancia magnética nuclear, análisis del comportamiento de los neutrones, etc.), en el secado de papel y textiles o en procesos de agricultura (modelizaciones del transporte de solutos en suelos). Para compuestos gaseosos, la difusión avanza a una velocidad de 10 cm en un minuto; en líquidos, $0.05 \text{ cm} \cdot \text{min}^{-1}$ y en sólidos, únicamente $0.00001 \text{ cm} \cdot \text{min}^{-1}$ (Othman et al., 2006; Masaro et al., 1999).

El transporte por difusión está condicionado por diferentes parámetros entre los que se encuentran las propiedades del medio en el que se produce la transferencia, que determinan la distancia que puede recorrer el radón antes de desintegrarse. Dicha distancia varía mucho en función del material en el que se difunda: para suelos húmedos de grano fino, la distancia varía de 0.2 a 0.5 m; mientras que para arenas gruesas y secas puede alcanzar los 1.5 m. En materiales densos, como el granito, la distancia de difusión es menor, entre 0.1 y 0.15 m. En aire, esta longitud puede alcanzar los 2.2 m (IAEA, 2013) y en agua, entre 0.2 y 0.3 m (Hassan, 2009; Singh, 1993).

Estudios experimentales muestran que la difusión de radón disminuye al aumentar la densidad del material por el que circula, y, en el caso de materiales sólidos, es inversamente proporcional a su porosidad. En aire, el coeficiente de difusión del radón es del orden de $2.11 \cdot 10^{-1} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ para una densidad de $0.11 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$; en tierra es de $4.41 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ (porosidad 50.42% y densidad de $2.27 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$) y en agua $1.97 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ para una densidad $1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ (Singh, 1993).

En esta investigación, se analiza el proceso de transferencia de radón a través de distintos medios: primero a través de aire y, posteriormente, en agua y aire de forma simultánea, tanto en condiciones estáticas como de régimen turbulento para el medio acuoso. En el primer caso, se produce una emanación de radón directa desde la fuente y este se va acumulando en aire. En el segundo caso, la fuerza impulsora del flujo del radón es causada por el gradiente de concentración en ambas fases (agua-aire), difundiéndose del punto con mayor concentración (el agua) al de menor concentración (aire). Los átomos de radón se van liberando desde el agua enriquecida a través de la interfase y se van acumulando en el aire, considerando también el propio decaimiento del elemento radiactivo.

El análisis de la difusión de radón en distintos medios como agua y aire se lleva a cabo a partir de las ecuaciones de balance de materia desarrolladas en este capítulo, que permiten modelizar su comportamiento y estudiar los diferentes parámetros que lo caracterizan.

En la siguiente Figura 7.1. se muestra un esquema del proceso seguido en este capítulo.

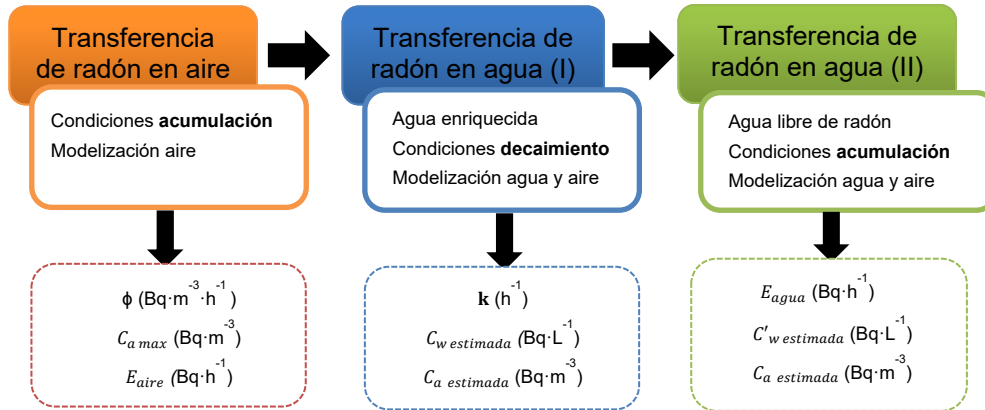


Figura 7.1. Esquema resumen de la distribución del capítulo 7

A continuación, se presentan las ecuaciones de transporte aplicadas al análisis del comportamiento del gas radón y su transferencia en diferentes medios. En el primer caso, se describen las ecuaciones que representan la difusión de radón en aire en el interior del tanque experimental, cuando únicamente se ha depositado la fuente generadora y, por tanto, se produce la acumulación de radón. En el segundo caso, se describen las ecuaciones correspondientes a la transferencia de radón en agua y en aire cuando inicialmente ya se dispone de agua enriquecida con radón y cuando se dispone inicialmente de agua libre de radón y una fuente la enriquece, tal y como se ha mostrado en la figura anterior.

7.2. Transferencia de radón en aire

En ese apartado se detalla el proceso de acumulación de radón en aire en el interior de un recipiente cerrado, aislado del exterior.

A nivel matemático, el proceso difusivo de transferencia de radón viene determinado por la Ley de Fick según la cual el *flux* es proporcional al gradiente de concentración, según la ecuación (7.1)

$$\vec{J}_{Rn} = -D_{MA} \cdot \vec{\nabla} C_a, \quad (7.1)$$

siendo \vec{J}_{Rn} es el vector de densidad de flujo efectiva del radón ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$), D_{MA} es el coeficiente de difusión del gas ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$) y C_a es la concentración de

radón ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$). Dado que, en procesos difusivos normales, las partículas no se crean ni se destruyen, el flujo en una región es la suma del flujo de las partículas que fluyen en los alrededores de las regiones.

Esto se expresa matemáticamente según la ecuación de continuidad (7.2)

$$\frac{\partial C_a}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{J}_{Rn} = 0. \quad (7.2)$$

El primer término representa la variación de concentración en función de tiempo y el segundo término, el gradiente del flujo J. Sustituyendo las ecuaciones (7.1) y (7.2), y considerando que el coeficiente D no varía de posición, se obtiene la segunda Ley de Fick

$$\frac{\partial C_a}{\partial t} = D \nabla^2 C_a. \quad (7.3)$$

Expandiendo la ecuación anterior y escrita en coordenadas espaciales, se obtiene la ecuación (7.4)

$$\frac{\partial C_a}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 C_a}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C_a}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 C_a}{\partial z^2} \right). \quad (7.4)$$

La ecuación (7.4) se puede aproximar a un problema unidimensional porque el radón permanece siempre uniformemente distribuido en el plano horizontal (Calugaru, 2002). Y, por tanto, se pueden despreciar los ejes x e y. Se asume que la difusión se produce únicamente en el eje z, seleccionado para la columna vertical de agua. La ecuación anterior se simplifica en la ecuación (7.5)

$$\frac{\partial C_a}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 C_a}{\partial z^2} \right). \quad (7.5)$$

Esta ecuación (7.5) no modeliza completamente el comportamiento difusivo del radón, ya que se requiere de otro término que considere también la desintegración del radón. Para ello, se debe añadir un término que lo caracterice, tal y como se muestra en la ecuación (7.6)

$$\frac{\partial C_a}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 C_a}{\partial z^2} \right) - \lambda C_a, \quad (7.6)$$

donde λ es la constante de desintegración del gas radón (h^{-1}).

Particularizando al caso de estudio en esta investigación, en la Figura 7.2 se muestra un esquema de la dinámica de las variaciones de radón.

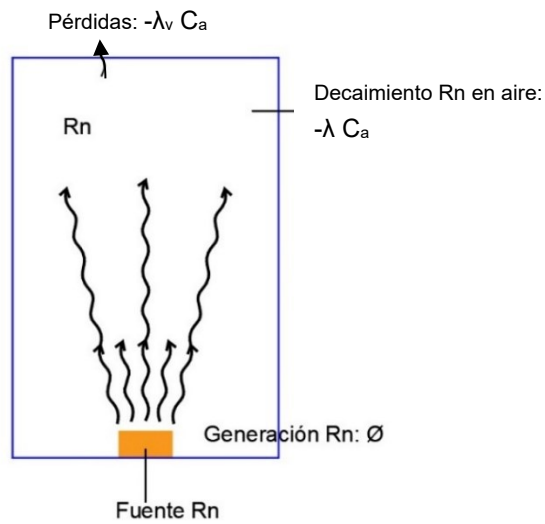


Figura 7.2. Esquema de las variaciones de radón en aire en el tanque experimental.

La acumulación de radón en el interior del recipiente viene dada por la ecuación de conservación de la materia (radón, en este caso) aplicada al volumen de control total del depósito, que corresponde a la ecuación diferencial que presenta la forma de la ecuación (7.7)

$$\frac{dC_a}{dt} = \phi - \lambda C_a, \quad (7.7)$$

siendo $\frac{dC_a}{dt}$ la variación de la concentración (C_a , de radón en aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) respecto al tiempo; ϕ la tasa de generación de radón ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{h}^{-1}$), y λ la constante que tiene en cuenta tanto la constante de desintegración del radón como las pérdidas del gas del sistema.

La tasa de generación, ϕ , viene definida por la ecuación (7.8)

$$\phi = \frac{E' S_{fuente}}{V_a}, \quad (7.8)$$

donde E' es la tasa de emanación por unidad de superficie de la fuente ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$); S_{fuente} la superficie de la fuente (m^2) y V_a el volumen de aire del interior del tanque (m^3)

Reordenando los términos y multiplicando a ambos lados por $e^{\lambda t}$, se obtiene

$$e^{\lambda t} \left(\frac{dC_a}{dt} + \lambda C_a \right) = \phi e^{\lambda t}, \quad (7.9)$$

$$\left(\frac{d(C_a e^{\lambda t})}{dt} \right) = \phi e^{\lambda t}. \quad (7.10)$$

Integrando entre un tiempo 0 y T se obtiene

$$\int_0^T \frac{d(C_a e^{\lambda t})}{dt} = \int_0^T \phi e^{\lambda t} dt. \quad (7.11)$$

Resolviendo la ecuación anterior

$$C_a e^{\lambda T} - C_{a0} = \frac{\phi}{\lambda} (e^{\lambda T} - 1). \quad (7.12)$$

Reordenando términos y deshaciendo el cambio de variables oportuno, se obtiene la ecuación que define el comportamiento del gas radón, según se muestra en la ecuación (7.13)

$$C_a(t) = C_{a0} e^{-\lambda t} + \frac{\phi}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda t}). \quad (7.13)$$

Dado que la concentración inicial de radón en aire C_{a0} es nula, el modelo que permite predecir el comportamiento de este gas sigue la forma de la ecuación (7.14)

$$C_a(t) = \frac{\phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}). \quad (7.14)$$

Aplicando la condición de máximo contorno, $\frac{dC_a}{dt} = 0$, se puede obtener el valor de la concentración máxima del sistema cuando se alcanza el equilibrio según la ecuación (7.15)

$$C_{a \max} = \frac{\phi}{\lambda}, \quad (7.15)$$

siendo $C_{a \max}$ la concentración máxima de radón que se alcanza en el aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$).

7.3. Transferencia de radón del agua al aire

La transferencia de radón del agua al aire es un proceso importante que analizar dado que, en la mayoría de los casos, el riesgo asociado a la exposición al radón en agua reside principalmente en su inhalación cuando el gas es liberado en el aire y no en su ingesta.

El radón, escapa desde el agua atravesando la interfase agua-aire hasta alcanzar el aire, donde se difunde. El transporte en este punto no ha sido estudiado ampliamente, pese a disponer de alguna investigación en la que se modeliza la transferencia entre ambos medios (Calugaru et al., 2002). El flujo de radón en la interfase se define en función de su concentración en ambas fases (condición de Robin). Esta condición tiene en cuenta dos constantes: el coeficiente de Ostwald (α) y el coeficiente de velocidad de transferencia (k). El coeficiente de Ostwald representa la relación entre la concentración de radón en agua y en aire, lo que define la solubilidad del radón en el agua, tal y como se muestra en la Ecuación 2.17. Este coeficiente se define según la Ecuación 2.18, para un rango de 0 a 40 °C y a 1 atm de presión. El valor oscila entre 0.525 para 0°C y 0.157 para 40°C. Por su parte, el coeficiente de transferencia de materia representa la velocidad de transferencia de radón, y tiene órdenes de magnitud entre $10^{-4} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (Vinson et al, 2008) y $10^{-6} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (Ongori et al., 2015).

En algunas investigaciones se analizan las partículas de gas radón en la interfase agua-aire cuando se difunde del medio acuoso al aire. En este caso, la difusión molecular que gobierna el flux de átomos de radón a través de la interfase se describe según la ecuación (7.16) (Calugaru et al., 2002):

$$F(t) = k[C_w(t) - \alpha C_a(t)], \quad (7.16)$$

siendo $F(t)$ el flux del gas radón desde el agua hasta el aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$); k , el coeficiente de velocidad de transferencia ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$); $C_w(t)$ la concentración de radón en agua ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$); α el coeficiente de Ostwald (adimensional) y $C_a(t)$, la concentración de radón en aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$).

Esta ecuación, que define la transferencia de radón a través de la interfase agua-aire, se aplicará a continuación para determinar la ecuación que defina el comportamiento del gas radón en dos casos particulares en los que coexisten las dos fases agua y aire:

- Caso 1: se dispone de agua enriquecida con radón, desde donde se libera, hasta difundirse en aire. Con el paso del tiempo, se produce una disminución de la concentración dado que el proceso principal que rige el comportamiento del radón es su propio decaimiento. Los ensayos en estas condiciones permiten determinar el coeficiente de velocidad de transferencia, k , del agua al aire.
- Caso 2: se dispone de agua libre de radón y se sumerge una fuente generadora de radón que lo emana de forma continua, de manera que el medio acuoso se va enriqueciendo. El radón acumulado en el agua se va liberando continuamente al aire, donde también se acumula. Este caso permite determinar la tasa de emanación, E , de gas radón en agua.

A continuación, se describen las ecuaciones correspondientes a cada caso de estudio. El fenómeno de transferencia de radón agua-aire se analiza inicialmente cuando ya se dispone de agua enriquecida, lo que permite obtener el coeficiente de velocidad de transferencia entre ambas fases. Este parámetro es utilizado posteriormente para determinar la tasa de emanación cuando se dispone de agua libre de radón y existe una fuente que la va enriqueciendo.

7.3.1. Transferencia de radón agua-aire. Condiciones de decaimiento de radón

En este apartado se desarrolla el modelo analítico que determina el comportamiento del gas radón en su liberación al aire cuando se dispone de agua ya enriquecida. Dado que el proceso que rige su comportamiento es el decaimiento, sin alteraciones externas, se puede determinar el coeficiente de velocidad de transferencia del radón.

En la Figura 7.3 se muestra el diagrama del proceso de transferencia de liberación de radón del agua al aire cuando se dispone de agua enriquecida.

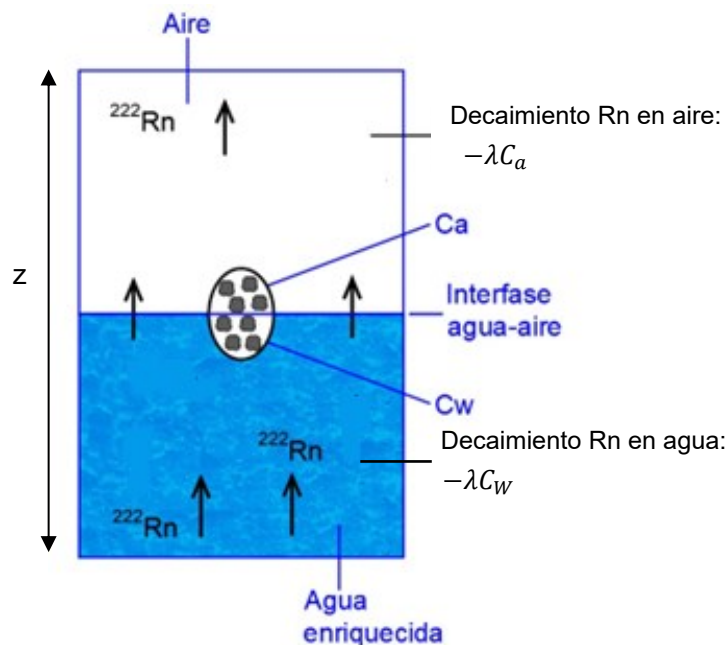


Figura 7.3. Esquema de las variaciones de radón en agua y aire en el tanque experimental cuando el agua ya está enriquecida previamente.

Se plantea el balance de materia, considerando como volumen de control el medio acuoso, según se muestra en la siguiente ecuación

$$\frac{dC_w}{dt} = -\frac{S F(t)}{V_w} - \lambda C_w(t), \quad (7.17)$$

siendo $C_w(t)$ la concentración de radón en agua ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$); S la superficie de contacto de la interfase agua-aire (m^2); $F(t)$ el *flux* del gas radón desde el agua hasta el aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$); λ la constante de desintegración de radón (h^{-1}) y V_w el volumen de agua (m^3).

El primer término es la variación de la concentración de radón en agua respecto del tiempo; el segundo, el flujo de radón que se libera al aire a través de la interfase y el tercero, el decaimiento de su concentración.

Considerando la definición del *flux*, según la ecuación (7.16), se sustituye este parámetro en la ecuación anterior

$$\frac{dC_w}{dt} = -\frac{S k [C_w(t) - \alpha C_a(t)]}{V_w} - \lambda C_w(t). \quad (7.18)$$

Reajustando los términos, se obtienen las siguientes ecuaciones del balance de materia aplicado al sistema de la Figura 7.3

$$\frac{dC_w}{dt} = -\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) C_w(t) + \frac{S k \alpha}{V_w} C_a(t), \quad (7.19)$$

$$\frac{dC_w}{dt} + \left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) C_w = \frac{S k \alpha}{V_w} C_a(t). \quad (7.20)$$

Se multiplican ambos lados de la igualdad por el parámetro exponencial $e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right)t}$ y se integra en un intervalo de tiempo entre T_0 y T_1

$$\int_{T_0}^{T_1} \frac{d[C_w e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right)t}]}{dt} = \int_{T_0}^{T_1} \frac{S k \alpha}{V_w} C_a(t) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right)t} dt. \quad (7.21)$$

Resolviendo la integral, se obtiene la siguiente ecuación (7.22)

$$\begin{aligned}
 C_w(T_1) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} - C_w(T_0) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_0} \\
 = \frac{S k \alpha}{V_w} \left[\frac{C_a(T_1) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} + C_a(T_0) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_0}}{2} \right]. \quad (7.22)
 \end{aligned}$$

Se reordenan los términos de la ecuación anterior y se obtiene la ecuación (7.23)

$$\begin{aligned}
 C_w(T_1) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} \\
 = C_w(T_0) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_0} \\
 + \frac{S k \alpha}{V_w} \left[\frac{C_a(T_1) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} + C_a(T_0) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_0}}{2} \right]. \quad (7.23)
 \end{aligned}$$

Para despejar el valor de la concentración de radón en agua estimada $C_w(T_1)$, ambos lados de la igualdad se dividen entre el factor exponencial $e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1}$

$$\begin{aligned}
 C_w(T_1) \\
 = C_w(T_0) e^{-\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) (T_1 - T_0)} \\
 + \frac{S k \alpha}{V_w} \left[\frac{C_a(T_1) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} + C_a(T_0) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_0}}{2} \right] e^{-\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} \quad (7.24)
 \end{aligned}$$

siendo $C_w(T_1)$ y $C_w(T_0)$ la concentración de radón en agua ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) en el instante de la iteración (T_1) y en el instante anterior (T_0), respectivamente; S la superficie de contacto agua-aire (m^2); k el coeficiente de velocidad de transferencia del gas radón ($\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$); V_w el volumen de agua (m^3); λ la constante de desintegración del radón (h^{-1}); α el coeficiente de Ostwald (adimensional); y $C_a(T_1)$ y $C_a(T_0)$ las concentraciones de radón en aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) en el instante de la iteración y en instante anterior. El valor de la integral correspondiente a la concentración de radón en aire $C_a(t)$ se ha calculado según la regla del trapecio, un método que permite calcular de forma aproximada el valor de la integral definida. Se aproxima el área bajo la curva en el intervalo dado a partir de la suma de las áreas de los trapecios. En este caso, se obtiene el valor medio para el paso de tiempo T_1 y T_0 .

Esta ecuación permite obtener el coeficiente de velocidad de transferencia, (k), que determina cómo se produce la liberación del gas radón del agua al aire, es decir, la velocidad de transferencia de un medio a otro (Vinson et al., 2008; Lindsay et al., 2015). El coeficiente k se calcula mediante la minimización de errores cuadráticos entre la concentración de radón estimada (iterativa) y la concentración de radón experimental. Para ello se utiliza la función *fminsearch* de Matlab, tal y como se detalla en el Capítulo 8.

A partir de la ecuación (7.21), se despeja el valor de la concentración de radón en aire e integrando, y de forma análoga al procedimiento seguido para obtener C_w , se puede estimar la concentración de radón en aire según la ecuación (7.25)

$$\begin{aligned}
 & C_a(T_1) \\
 &= C_a(T_0) e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) (T_1 - T_0)} \\
 &+ \frac{S k}{V_a} \left[\frac{C_w(T_1) e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_1} + C_w(T_0) e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_0}}{2} \right] e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_1}. \quad (7.25)
 \end{aligned}$$

siendo $C_a(T_1)$ y $C_a(T_0)$ la concentración de radón en aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) en el instante de la iteración y en el instante anterior respectivamente; S la superficie de contacto agua-aire (m^2); k el coeficiente de velocidad de transferencia del gas radón (h^{-1}); V_a el volumen de aire (m^3); λ la constante de desintegración del radón (h^{-1}); α el coeficiente de Ostwald (adimensional); y $C_w(T_1)$ y $C_w(T_0)$ las concentraciones de radón en agua ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) en el instante de la iteración y en instante anterior.

7.3.2. Transferencia de radón agua-aire. Condiciones de acumulación de radón

En este apartado se desarrolla el modelo que rige el comportamiento del gas radón cuando coexisten dos fases (agua y aire) y existe una fuente, emisora de radón, en contacto con el agua. El esquema se muestra en la Figura 7.4.

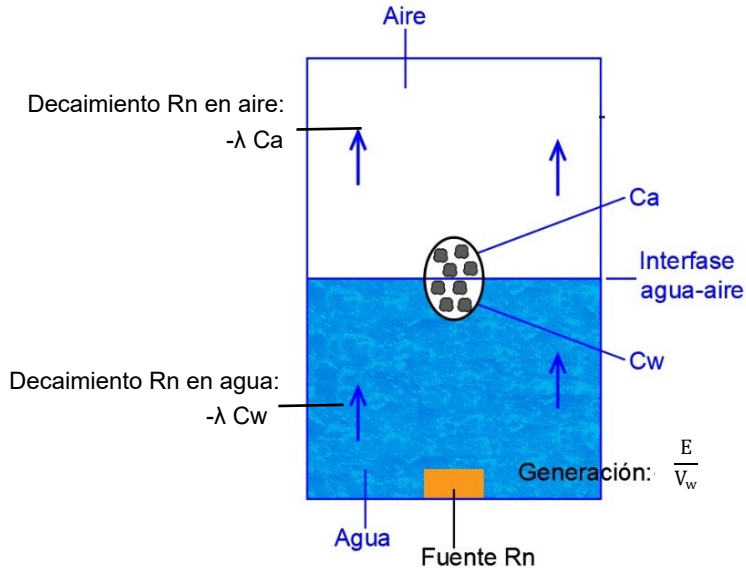


Figura 7.4. Esquema de las variaciones de radón en agua y aire en el tanque experimental con aporte de radón.

Inicialmente, se dispone de una fuente generadora de radón, que enriquece el agua que la contiene. Se aplica un balance de materia al sistema, teniendo en cuenta que la acumulación que se produce es igual a lo que se va generando, lo que se libera al aire y lo que va decayendo según la propia desintegración del radón, según se muestra en la ecuación (7.26)

$$\frac{dC_w}{dt} = \frac{E}{V_w} - \frac{S F(t)}{V_w} - \lambda C_w(t), \quad (7.26)$$

donde $C_w(t)$ es la concentración de radón en agua ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$); S la superficie de contacto de la interfase (m^2); $F(t)$ el *flux* del gas radón desde el agua hasta el aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$); λ la constante de desintegración de radón (h^{-1}); V_w el volumen de agua (L convertidos a m^3); y E la tasa de emanación de gas radón en el agua ($\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$).

Teniendo en cuenta la definición del flujo, ya mostrada en la ecuación (7.16), se reajustan y reordenan los términos según las siguientes ecuaciones.

$$\frac{dC_w}{dt} = \frac{E}{V_w} - \frac{S k [C_w(t) - \alpha C_a(t)]}{V_w} - \lambda C_w(t), \quad (7.27)$$

$$\frac{dC_w}{dt} = \frac{E}{V_w} - \left(\frac{S k}{V_w} + \lambda \right) C_w(t) + \frac{S k \alpha}{V_w} C_a(t). \quad (7.28)$$

Se multiplican ambos lados de la igualdad por el parámetro exponencial $e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) t}$ y se integra en un intervalo de tiempo entre T_0 y T_1 según la ecuación

$$\int_{T_0}^{T_1} \frac{d[C_w e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) t}]}{dt} = \int_{T_0}^{T_1} \frac{E}{V_w} e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) t} dt + \int_{T_0}^{T_1} \frac{S k \alpha}{V_w} C_a(t) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) t} dt. \quad (7.29)$$

Se resuelve la integral anterior y se obtiene la siguiente ecuación (7.30)

$$\begin{aligned} C_w(T_1) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} - C_w(T_0) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_0} \\ = \frac{E}{V_w} \left[\frac{e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} - e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_0}}{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right)} \right] \\ + \frac{S k \alpha}{V_w} \left[\frac{Ca(T_1) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} + Ca(T_0) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_0}}{2} \right]. \end{aligned} \quad (7.30)$$

Para despejar y calcular el valor de $C_w(T_1)$ se divide, en ambos lados, por el factor exponencial $e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1}$

$$\begin{aligned}
 & C'_w(T_1) \\
 &= C_w(T_0) e^{-\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right)(T_1 - T_0)} \\
 &+ \frac{S k \alpha}{V_w} \left[\frac{C_a(T_1) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} + C_a(T_0) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_0}}{2} \right] e^{-\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} \\
 &+ \frac{E}{V_w} \left[\frac{1 - e^{-\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right)(T_1 - T_0)}}{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right)} \right].
 \end{aligned} \tag{7.31}$$

siendo $C'_w(T_1)$ y $C_w(T_0)$ la concentración de radón en agua ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) en el instante de la iteración y en el instante anterior, respectivamente; S la superficie de contacto agua-aire (m^2); k el coeficiente de velocidad de transferencia del gas radón (h^{-1}); V_w el volumen de agua (m^3); λ la constante de desintegración del radón (h^{-1}); α el coeficiente de Ostwald (adimensional); y E , la emanación de radón de la fuente en el agua ($\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$) $C_a(T_1)$ y $C_a(T_0)$ las concentraciones de radón en aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) en el instante de la iteración y en instante anterior.

El valor de la integral correspondiente a la concentración de radón en aire $C_a(t)$ se ha calculado también según la regla del trapecio que permite obtener una mejor aproximación, para los instantes de tiempo T_1 y T_0 .

La ecuación anterior permite obtener el valor de emanación de gas radón en el agua también mediante la minimización de errores cuadráticos entre la concentración de radón estimada (iterativa) y la concentración de radón experimental. De nuevo, se utiliza la función *fminsearch* de Matlab, detallada en el Capítulo 8.

A partir de la ecuación (7.29), se despeja el valor de la concentración de radón en aire y se integra. Se obtiene así la estimación de la concentración de radón en aire.

$$\begin{aligned}
 & C'_a(T_1) \\
 &= C'_a(T_0) e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right)(T_1 - T_0)} \\
 &+ \frac{S k}{V_a} \left[\frac{C_w(T_1) e^{\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_1} + C_w(T_0) e^{\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_0}}{2} \right] e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_1} \\
 &+ \frac{E}{V_w} \left[\frac{1 - e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right)(T_1 - T_0)}}{\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right)} \right].
 \end{aligned} \tag{7.32}$$

donde V_a es el volumen de aire (m^3).

CAPÍTULO 8

MODELIZACIÓN DE LA DIFUSIÓN DE RADÓN

En este capítulo se presentan los ajustes y modelizaciones llevadas a cabo para analizar la difusión del gas radón en aire y a través de la interfase agua-aire a partir de los resultados experimentales obtenidos en el Capítulo 6. Se determinan los parámetros que definen el comportamiento del gas radón en diferentes medios y diferentes condiciones de ensayo.

8.1. Introducción

La modelización de los resultados experimentales obtenidos en el Capítulo 6 se ha llevado a cabo aplicando los diferentes modelos matemáticos desarrollados a lo largo del Capítulo 7, según las diferentes condiciones ensayadas. El objetivo principal es analizar la transferencia de gas radón para poder predecir su comportamiento en condiciones diferentes a las ensayadas inicialmente.

El análisis de la transferencia del gas radón en varios medios (aire e interfase agua-aire) se ha dividido en tres bloques:

- Difusión de radón en aire: modelización de la acumulación del gas generado por las fuentes F1, F2 y F3 en el interior de los depósitos de 30 L y 120 L. Se aplica la ecuación correspondiente para cada condición de ensayo y se obtienen los parámetros característicos: concentración máxima ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) y tasa de emisión de la fuente ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{h}^{-1}$).
- Transferencia de radón agua-aire: modelización de los resultados experimentales en decaimiento. A partir de los resultados experimentales obtenidos, se modeliza el comportamiento del gas radón cuando el agua ya está previamente enriquecida y no existe fuente en

el interior del depósito. Se obtiene el coeficiente de velocidad de transferencia, k , tanto para agua estática como cuando está en agitación. Para validar el coeficiente de velocidad, se modeliza la concentración de radón en aire estimada, que se compara con el valor experimental medido.

- Transferencia de radón agua-aire: a partir de los resultados experimentales obtenidos en el Capítulo 6 y del valor del coeficiente de transferencia k obtenido en decaimiento, se modeliza el comportamiento del gas radón cuando se dispone de una fuente dentro del agua según las ecuaciones planteadas en el Capítulo 7. Se obtiene la tasa de emanación de la fuente E ($\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$) y la concentración estimada en agua, C'_w . Se determina la concentración de radón en aire (C'_a) estimada y se compara con el valor experimental, validando así la tasa de emanación calculada.

La herramienta utilizada para la ejecución de este capítulo es el software matemático Matlab (MATLAB & Simulink – MathWorks), una plataforma de programación y computación que permite analizar datos, desarrollar diferentes algoritmos y crear modelos y visualizar los resultados como los requeridos en esta Tesis Doctoral. Los programas desarrollados para este trabajo se adjuntan en los Anexos.

A continuación, se muestra el esquema del proceso seguido en el capítulo.

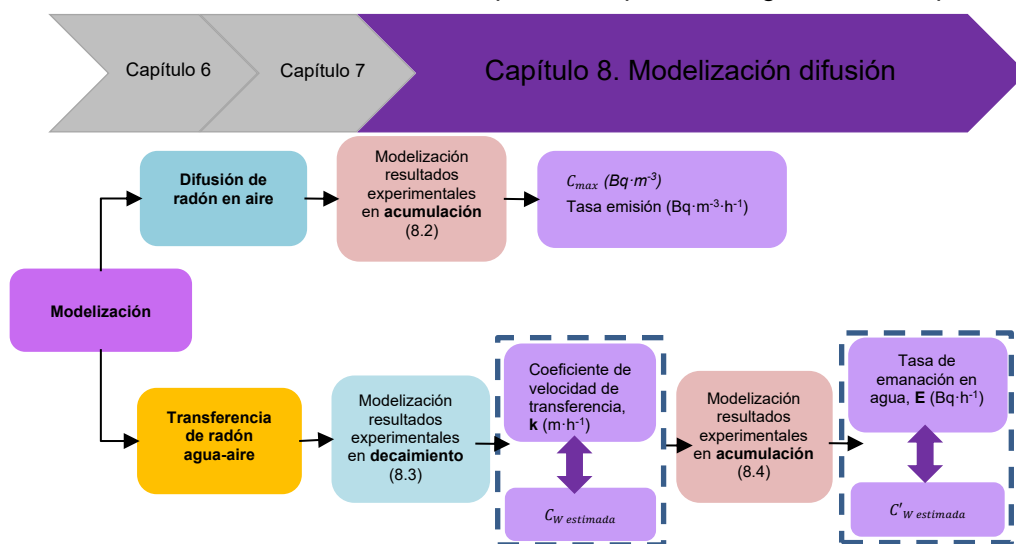


Figura 8.1. Esquema conceptual del Capítulo 8.

8.2. Transferencia de radón en aire: modelización resultados experimentales.

En este apartado se modelizan los resultados experimentales de radón en aire obtenidos en el apartado 7.2.1 del Capítulo 7, analizando su acumulación en el interior de los montajes experimentales. Se trata de obtener una expresión analítica que reproduzca los resultados experimentales, basándose en el comportamiento físico de decaimiento radiactivo y acumulación de radón en aire.

8.2.1. Procedimiento experimental

La metodología seguida se basa en modelizar las concentraciones de radón en aire generadas por las fuentes F1, F2 y F3 en el interior de los depósitos de 30 L y 120 L. Para ello, se ajustan los resultados experimentales a la siguiente ecuación ya planteada en el Capítulo 4

$$C_a(t) = C_0 e^{-\lambda t} + \frac{\phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}). \quad (4.7)$$

Para cada uno de los ensayos realizados de radón en aire, generado por las diferentes fuentes, se analiza el ajuste de los resultados experimentales, se presenta la ecuación del ajuste que modeliza su acumulación en el interior de los depósitos y se obtienen los parámetros característicos de concentración máxima ($C_{a\ max}$) y tasa de emisión (Φ).

Se considera que inicialmente la concentración de radón en aire es nula ($C_0 = 0$) y que las pérdidas del sistema (montaje experimental) son despreciables según los resultados del Capítulo 6, por lo que se fija el valor de $\lambda = 0.00756\ h^{-1}$, la constante de desintegración del gas radón. La ecuación que modeliza el comportamiento del gas radón es, por lo tanto,

$$C_a(t) = \frac{\phi}{0.00756} (1 - e^{-0.00756 t}). \quad (8.1)$$

La bondad del ajuste del modelo planteado a la variable concentración $C_a(t)$ se analiza a través del coeficiente de determinación R^2 , que oscila entre 0 y 1, siendo este último el ajuste lineal perfecto.

8.2.2. Resultados

A continuación, se presentan los resultados obtenidos para cada una de las fuentes generadoras de radón en cada uno de los depósitos de polietileno de alta densidad.

Concentración de radón en aire para la fuente F1

En la Figura 8.2 se muestran los valores de la concentración de radón en aire generado por la fuente 1 (1.84 ± 0.12 KBq) en los depósitos de 30 y 120 L durante 138 horas.

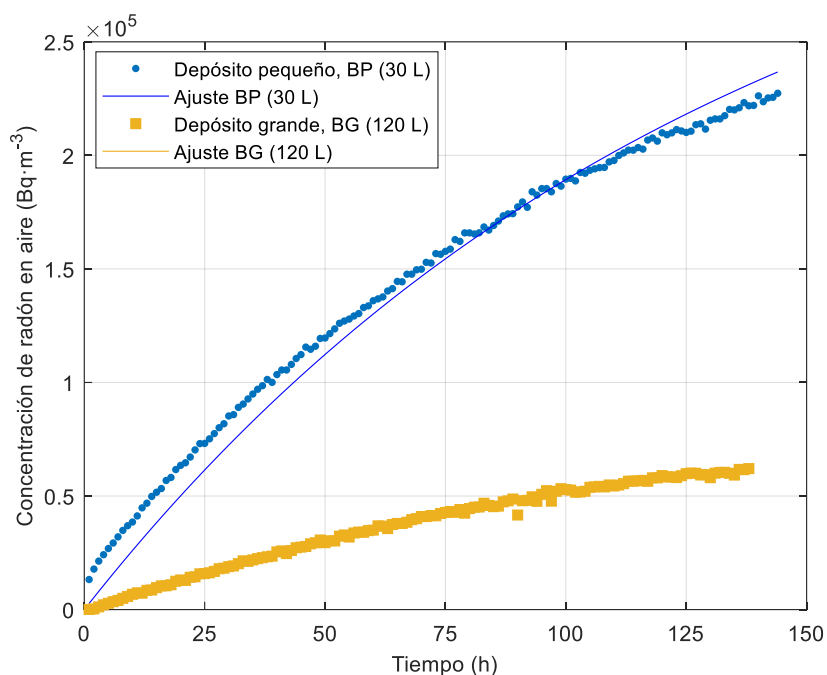


Figura 8.2. Acumulación de radón en aire generado por F1 en los depósitos de 30 y 120 L.

La concentración de radón en aire, durante las 138 horas de exposición de la fuente generadora, alcanza los $(2.22 \pm 0.22) \cdot 10^5$ Bq·m⁻³ en el depósito pequeño (BP) y $(0.62 \pm 0.062) \cdot 10^5$ Bq·m⁻³ en el de mayor volumen (BG). La pendiente de las rectas es más pronunciada para un volumen de aire inferior, ya que se produce una acumulación de radón mayor.

En ambos casos, los resultados experimentales se han ajustado a la ecuación (8.1) que representa la variación de la concentración de radón en el aire. Se verifica, en ambos casos, el crecimiento exponencial del radón en el interior de los dos depósitos. El ajuste se produce con una R^2 superior a 0.98.

El ajuste exponencial viene determinado por los siguientes parámetros de la Tabla 8.1.

Tabla 8.1. Ajuste exponencial de concentración de radón en aire para la fuente F1.

<i>Fuente de radón F1 (1.84 kBq)</i>		R^2
Depósito pequeño	$C_a(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}) = 3.58 \cdot 10^5 (1 - e^{(-0.00756 t)})$	0.9807
Depósito grande	$C_a(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}) = 9.67 \cdot 10^4 (1 - e^{(-0.00756 t)})$	0.9967

A partir de estas ecuaciones es posible predecir la concentración de radón obtenida en la emisión de la fuente F1, en función del tiempo. Para el depósito pequeño, el valor máximo de concentración alcanzable es de $3.58 \cdot 10^5$ y, para el depósito grande, $9.67 \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

La relación de concentración máxima entre ambos depósitos es $\simeq 4$, inversamente proporcional al volumen de aire analizado, validando la dependencia entre ambos parámetros. Esto permitiría estimar la concentración de radón en aire para cualquier depósito, de tamaño conocido donde se introduzca la fuente F1 únicamente aplicando la relación de volúmenes.

El valor de la tasa de emisión, ϕ_1 , que se obtiene a partir de las ecuaciones de la Tabla 8.1, es de $(2.71 \pm 0.025) \cdot 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$ para el depósito de 30 L, y de $(7.30 \pm 0.031) \cdot 10^2 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$ para el de 120 L de capacidad. Dado que la tasa de emisión son los Bq por unidad de tiempo que se emiten por unidad de volumen, es coherente que, para una misma cantidad de radón emitida, la tasa sea mayor cuanto menor es el volumen de aire existente en el espacio cerrado.

Concentración de radón en aire para la fuente F2

La concentración de radón en aire, generada por la fuente F2, de 4.27 ± 0.27 kBq, durante un periodo de exposición de 96 horas, se muestra en la Figura 8.3.

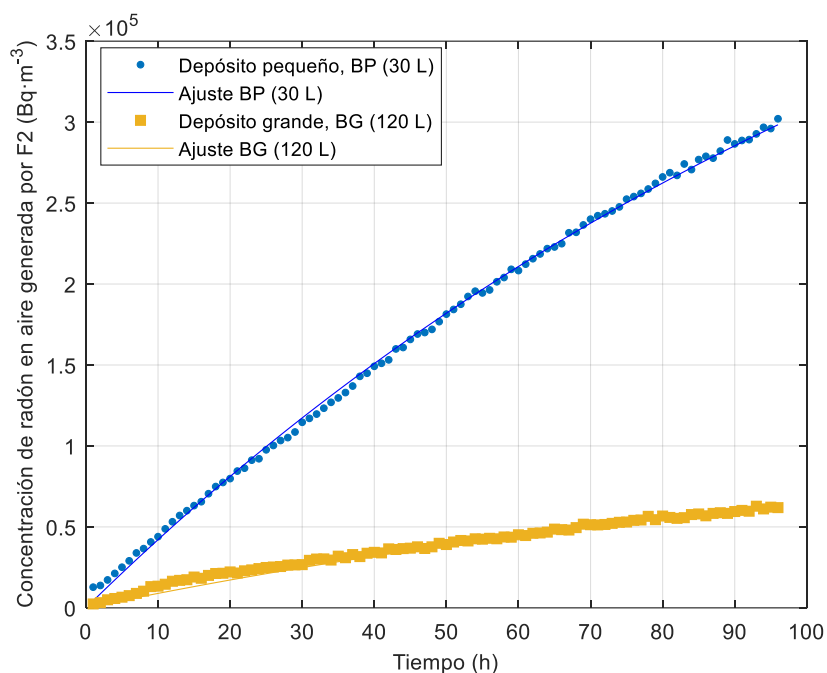


Figura 8.3. Acumulación de radón en aire generado por F2 en los depósitos de 30 y 120 L.

De nuevo, se observa una mayor acumulación de radón en el depósito de menor volumen, debido a la menor dilución del gas en el aire. Se alcanza una concentración de $(3.30 \pm 0.33) \cdot 10^5 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ en el bidón de 30 L mientras que en el de 120 L, el valor alcanzado es inferior, $(0.73 \pm 0.073) \cdot 10^5 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. En este caso, la pendiente de las rectas es mucho más pronunciada para un volumen de aire inferior, ya que se produce una acumulación de radón mucho más rápida.

Los resultados, tal y como se muestra en la Figura 8.3, se ajustan a la ecuación exponencial propuesta, con una R^2 superior a 0.99. En la Tabla 8.2 se presentan las ecuaciones obtenidas del ajuste.

Tabla 8.2. Ajuste exponencial de concentración de radón en aire para la fuente F2.

<i>Fuente de radón F2 (4.27 kBq)</i>		R^2
Depósito pequeño	$C_a(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}) = 6.46 \cdot 10^5 (1 - e^{(-0.00756 t)})$	0.9990
Depósito grande	$C_a(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}) = 1.45 \cdot 10^5 (1 - e^{(-0.00756 t)})$	0.9988

Según las ecuaciones previas, la concentración máxima alcanzada, que depende del volumen de aire y de la tasa de generación de la fuente, es de $6.46 \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ para el bidón pequeño y $1.45 \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ para el bidón grande. Como era de esperar, cuanto mayor es la actividad de la fuente, mayores concentraciones de radón se alcanzan.

En este caso, se cumple también una relación $\approx 4:1$ de las concentraciones máximas alcanzadas para una misma relación de volúmenes. Se podría estimar la concentración de radón que genera la fuente F2 en otras condiciones de ensayo únicamente a partir de la relación de volúmenes de aire.

La tasa de emisión calculada, ϕ_2 , es de $(4.88 \pm 0.015) \cdot 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$ para el depósito de 30 L y de $(1.09 \pm 0.018) \cdot 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$ para el de 120 L de capacidad. De nuevo, se cumple que cuanto menor es el volumen muestreado, mayor es la tasa de emisión.

Concentración de radón en aire para la fuente F3

La tercera fuente generadora de radón se expone durante un periodo de 48 horas, en los depósitos de 30 y 120 L. Los resultados obtenidos se muestran en la Figura 8.4.

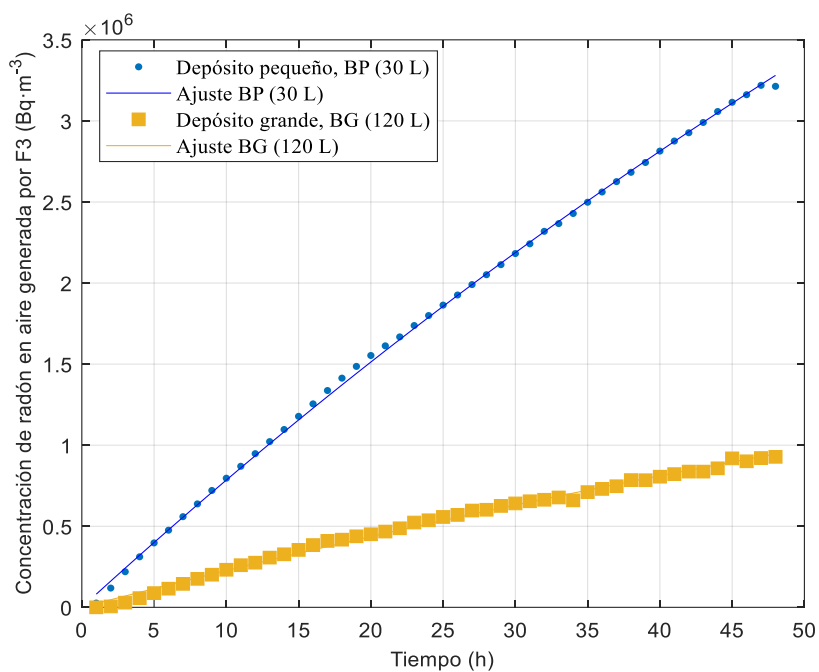


Figura 8.4. Acumulación de radón en aire generado por F3 en los depósitos de 30 L y 120 L

Tal y como sucedía en los ensayos anteriores, se produce una acumulación mayor de la concentración de radón en aire cuanto mayor es la actividad de la fuente y menor es el volumen de aire en el que se puede difundir el gas. En el depósito pequeño, se alcanzan $(3.21 \pm 0.32) \cdot 10^6$ Bq·m⁻³ mientras que en el grande la concentración llega a los $(0.93 \pm 0.093) \cdot 10^6$ Bq·m⁻³ en apenas 48 horas. Comparando ambas pendientes, se observa que, de nuevo se produce una acumulación más pronunciada de radón en aire en el depósito de 30 L.

El ajuste de los resultados experimentales según la ecuación 3.4, presenta una R² superior a 0.99. En la Tabla 8.3 se presentan las ecuaciones obtenidas del ajuste.

Tabla 8.3. Ajuste exponencial de concentración de radón en aire para la fuente F3.

<i>Fuente de radón F3 (45.1 kBq)</i>		R^2
Depósito pequeño	$C_a(Bq \cdot m^{-3}) = 1.08 \cdot 10^7(1 - e^{(-0.00756 t)})$	0.9995
Depósito grande	$C_a(Bq \cdot m^{-3}) = 3.11 \cdot 10^6(1 - e^{(-0.00756 t)})$	0.9947

El valor de la concentración máxima que se alcanzaría en ambos depósitos es mucho mayor que en los ensayos anteriores: $1.08 \cdot 10^7$ Bq·m⁻³ para el bidón pequeño y $3.11 \cdot 10^6$ Bq·m⁻³ para el de 120 L. La relación de concentraciones en este caso es también ≈ 4 , inversamente proporcional a la relación entre los volúmenes, por lo que de nuevo se valida la dependencia de la acumulación de radón en aire con el volumen en el esta se produce. Se verifica la posibilidad de estimar la concentración que se alcanza con una misma fuente, para cualquier otro volumen de aire, considerando únicamente la relación de volúmenes.

La tasa de emisión calculada, Φ_3 , es de $(8.15 \pm 0.00025) \cdot 10^4$ Bq·m⁻³·h⁻¹ para la el depósito de 30 L y de $(2.35 \pm 0.00024) \cdot 10^3$ Bq·m⁻³·h⁻¹ para el depósito de 120 L de capacidad. Nuevamente se comprueba que la tasa de emisión es menor cuanto mayor es el volumen de aire en el que se difunde el gas radón.

Análisis de la tasa de emisión obtenida a partir del ajuste exponencial

El ajuste exponencial aplicado permite predecir la concentración de radón en aire que se alcanzaría en el sistema en función del tiempo, así como su valor máximo.

La tasa de emisión (generación) de cada fuente en las condiciones ensayadas se muestra en la Tabla 8.4.

Tabla 8.4. Tasas de emisión para cada una de las fuentes empleadas.

Tasa emisión	Depósito pequeño (30 L)	Depósito grande (120 L)
$\Phi_1, F1$ (Bq·m ⁻³ ·h ⁻¹)	$(2.71 \pm 0.025) \cdot 10^3$	$(7.30 \pm 0.031) \cdot 10^2$
$\Phi_2, F2$ (Bq·m ⁻³ ·h ⁻¹)	$(4.88 \pm 0.015) \cdot 10^3$	$(1.09 \pm 0.018) \cdot 10^3$
$\Phi_3, F3$ (Bq·m ⁻³ ·h ⁻¹)	$(8.15 \pm 0.00025) \cdot 10^4$	$(2.35 \pm 0.00024) \cdot 10^4$

Tal y como se observa en la tabla anterior, los resultados obtenidos de tasa de emisión son coherentes con el aumento de la actividad de la fuente. Así, para un mismo bidón, cuanto mayor sea la actividad de la fuente, mayor tasa de emisión. Si se analiza una misma fuente en ambos volúmenes se verifica que la tasa de emisión es mayor para un volumen de aire menor, dado que esta depende del volumen de aire existente en el espacio cerrado.

Se ha calculado la relación entre la tasa de emisión en el bidón pequeño y el grande. En los tres casos, es directamente proporcional al volumen de aire muestreado, cumpliéndose la relación 4:1 (bidón pequeño:bidón grande). Es decir, en el bidón pequeño, las tasas de emisión son hasta cuatro veces superiores a las del bidón de 120 L, valor que coincide con la relación de volúmenes.

A partir del valor de la tasa de emisión ϕ y del volumen de aire muestreado, se calcula la tasa de emanación E , ($\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$) según la definición del parámetro ϕ y, particularizado para las condiciones de ensayos de radón en aire

$$\phi_{\text{aire}} = \frac{E_{\text{aire}}}{V_{\text{aire}}}, \quad (8.1)$$

siendo,

$$E_{\text{aire}} = E'_{\text{aire}} S_{\text{fuente}} \quad (8.2)$$

Se despeja el valor de la tasa de emanación de radón en aire, E_{aire} , y se obtiene que para la fuente F1, se sitúa entre (81.3 ± 0.75) y (87.6 ± 0.37) $\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$; para la fuente F2, oscila entre (146.4 ± 0.45) y (130.8 ± 2.16) $\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$ y para la fuente F3, (2445 ± 0.075) y (2820 ± 0.29) $\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$ para los volúmenes de 30 L y 120 L respectivamente. Se valida que la tasa de emanación se mantiene constante para una misma fuente independientemente del volumen de aire del recipiente.

A partir de los resultados obtenidos de tasa de emanación (proporcional a la relación entre volúmenes), se concluye que, mediante su cálculo para una fuente en un único volumen de aire, se podría estimar cuál sería el valor en cualquier otro volumen, teniendo en cuenta el incremento o disminución del mismo respecto de las condiciones iniciales de ensayo.

8.2.3. Discusión de resultados

En este ensayo se utilizan tres fuentes con actividades de 1.84 kBq, 4.27 kBq y 45 kBq, respectivamente, para analizar la acumulación de radón generado en dos depósitos de 30 L y 120 L.

Se observa que, independientemente de la fuente generadora y del volumen de aire analizado, el radón se acumula de forma exponencial en el interior del tanque. En los diversos ensayos, este ajuste presenta una R^2 superior a 0.98. Estos resultados son comparables con investigaciones previas, en las que se analiza el comportamiento del gas radón en aire y se ajusta a una misma ecuación exponencial (Fuente, 2015; Celaya, 2018).

El modelo dinámico propuesto permite conocer el comportamiento del gas radón en el aire, así como predecir las concentraciones que alcanzará para el sistema ensayado, que serán mayores cuanto mayor sea la actividad de la fuente. Por tanto, a partir de la tasa de emisión, obtenida en un único ensayo a un volumen pequeño, se puede estimar la evolución temporal de la concentración de radón en cualquier volumen de aire en un espacio cerrado (estancia, habitación, etc.).

Asimismo, se calcula la tasa de emanación de cada fuente a partir de los resultados de tasa de emisión obtenidos en el ajuste. Se valida que este parámetro se mantiene constante, para los diferentes volúmenes de aire muestreados. Y se observa que se puede estimar la tasa de emisión cualquier volumen de aire, simplemente mediante el cálculo de esta en un volumen dado.

8.3. Transferencia de radón agua-aire. Modelización resultados experimentales en decaimiento.

A continuación, se presenta el análisis del comportamiento del gas radón cuando coexisten dos medios (agua y aire) y se produce la difusión de uno a otro, considerando el proceso ya desarrollado en el Capítulo 4

$$\frac{dC_w}{dt} = -\frac{S F(t)}{V_w} - \lambda C_w(t), \quad (4.17)$$

siendo $C_w(t)$ la concentración de radón en agua ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$); S la superficie de contacto de la interfase (m^2); $F(t)$ el flux del gas radón desde el agua hasta el aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$); λ la constante de desintegración de radón (h^{-1}) y V_w el volumen de agua (m^3).

8.3.1. Metodología

Tal y como se ha detallado en el Capítulo 4 (Figura 4.3), el proceso de transferencia del radón se produce mediante la difusión de un medio con mayor concentración a otro de menor.

Generalmente, este proceso se analiza en la interfase agua-aire, a partir del flux de gas radón, $F(t)$, considerando las concentraciones de radón en ambas fases y el coeficiente de velocidad de transferencia (k). En la ejecución de esta Tesis Doctoral, el volumen de control se aplica sobre el medio acuoso, considerando los valores de concentración, de baja incertidumbre debido a la eficiencia del detector de centelleo Hidex 600 SL. El modelo planteado se ha descrito en el Capítulo 4 y se particulariza, para los datos disponibles, en las siguientes ecuaciones

$$\begin{aligned}
 C_w(T_1) &= C_w(T_0) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) (T_0 - T_1)} \\
 &+ \frac{S k \alpha}{V_w} \left[\frac{C_{a \text{ exp}}(T_1) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} + C_{a \text{ exp}}(T_0) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_0}}{2} \right] e^{-\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1}, \quad (8.3)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 C_a(T_1) &= C_a(T_0) e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) (T_1 - T_0)} \\
 &+ \frac{S k}{V_a} \left[\frac{C_{w \text{ exp}}(T_1) e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_1} + C_{w \text{ exp}}(T_0) e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_0}}{2} \right] e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_1}. \quad (8.4)
 \end{aligned}$$

Para determinar el coeficiente de velocidad de transferencia se requiere previamente de agua ya enriquecida de forma que el comportamiento del radón venga determinado únicamente por su decaimiento y liberación al aire. Por ello, se utilizan los datos experimentales obtenidos en su proceso de decaimiento, mostrados en el Capítulo 7, en las dos condiciones de ensayo: cuando el agua está estática y cuando se encuentra en agitación. El procedimiento seguido, utilizando la herramienta de cálculo Matlab, es:

- Ajuste de los datos experimentales de la concentración de radón en agua. En el caso de los ensayos con agua, la extracción de muestras se realiza de forma manual y el detector Hidex 600 SL, detector pasivo, no analiza la concentración de forma continua (hora a hora) como sí sucede en aire con el detector Radon Scout Plus. Para disponer de valores en

los mismos tiempos de medida, se requiere ajuste de los datos experimentales con elevada precisión. En todos los casos el ajuste se realiza con $R^2 > 0.90$

- Se calcula el valor del coeficiente de velocidad de transferencia en la interfase agua-aire mediante iteraciones consecutivas que, a su vez, permiten obtener el valor de la concentración de radón en agua estimada, C_w , para cada instante de tiempo según la ecuación (8.3)

Se desarrolla un algoritmo iterativo basado en la inicialización del coeficiente de velocidad de transferencia que permite una rápida convergencia mediante la técnica matemática de minimización del error cuadrático. A partir de los datos experimentales, se halla la solución numérica que mejor se aproxime, minimizando la suma del cuadrado de los residuos. Los residuos, a su vez, se calculan como la diferencia entre la concentración experimental de radón en agua y el valor de la estimada de forma iterativa. Para ello se utiliza la función *fminsearch*, de Matlab, que encuentra ese valor mínimo de la función multivariable dada, utilizando un método libre de derivativos. Se pretende que la diferencia entre el valor experimental y el valor estimado sea la mínima posible para que satisfaga el modelo planteado. En cada caso, se calculan los límites superior e inferior del valor de la concentración estimada, con un intervalo de confianza del 95.5% ($\pm 2 \sigma$).

La modelización de los resultados experimentales se lleva a cabo según los parámetros de la Tabla 8.5. Al algoritmo se le pasa como variable de entrada un único valor, el inicial, de concentración de radón en agua medido experimentalmente, y los valores de los parámetros S , α , λ y V_w , o V_a , (según se aplique ecuación 8.2 o 8.3), que se mantienen constantes. Durante el cálculo de del coeficiente k , se introducen también valores experimentales de concentración de radón en aire, pero, debido al orden de magnitud, muy inferior al primer término de la ecuación (8.3) puede considerarse como nulo.

A continuación, en la Tabla 8.5 se muestran los parámetros necesarios para llevar a cabo el estudio dinámico del gas radón.

Tabla 8.5. Parámetros utilizados para la modelización de la ecuación (8.2) y (8.3).

Símbolo	Parámetro	Valor
$C_{a\ exp}(t)$	Concentración de radón en aire para tiempo de <i>iteración i</i>	Datos experimentales, Capítulo 6 ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)
$C_{w\ exp}(t_i)$	Concentración de radón en agua para inicialización de la iteración	Ajuste de los datos experimentales, Capítulo 6 ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ convertidos a $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)
$C_a(t)$	Concentración de radón en aire estimada	Por determinar
$C_w(t)$	Concentración de radón en agua estimada	Por determinar
S	Superficie agua-aire	$1.93\cdot 10^{-1}$ (m^2)
k	Coefficiente de velocidad de transferencia	Por determinar ($\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$)
α	Coefficiente de Ostwald	$2.73\cdot 10^{-1}$ ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)
λ	Constante de desintegración	$7.56\cdot 10^{-3}$ (h^{-1})
V_w	Volumen de agua	$2.5\cdot 10^{-3}$ (m^3)
V_a	Volumen de aire	$8.75\cdot 10^{-3}$ (m^3)
T_0, T_1	Intervalos de tiempo para cada iteración	$T_1 = T_0 + 1$ (h)

8.3.2. Resultados

Se presentan los resultados obtenidos para la determinación del coeficiente de transferencia de gas radón agua-aire, tanto en condiciones de agua en estático como en agitación.

Se determina el valor de la concentración de radón en agua estimada (C_w), utilizada para validar el coeficiente k y a concentración de radón en aire estimada (C_a).

Condiciones de ensayo de agua en estático

La determinación del coeficiente de velocidad k se basa en los valores experimentales de radón en agua y en aire presentados en el Capítulo 7. Sin embargo, considerando la caída brusca de la concentración cuando se extrae la fuente, y para que ya no haya crecimiento de la concentración en aire debido al aporte de radón residual desde el agua y, por tanto, únicamente haya decaimiento, es necesario descartar parte de los datos iniciales que incluyen pequeñas oscilaciones.

Por ello, se selecciona como punto de partida para la modelización un tiempo de 52 horas desde el inicio del decaimiento del gas radón. En ese momento, el aporte de radón residual del agua al aire es mínimo y el proceso predominante es el decaimiento del gas. En la Figura 8.5 y la Figura 8.6 se muestran los resultados experimentales de concentración de radón en agua y aire, incluyendo el punto de corte para la modelización en cada caso. Este punto indica el valor a partir del cual se va a llevar a cabo la modelización.

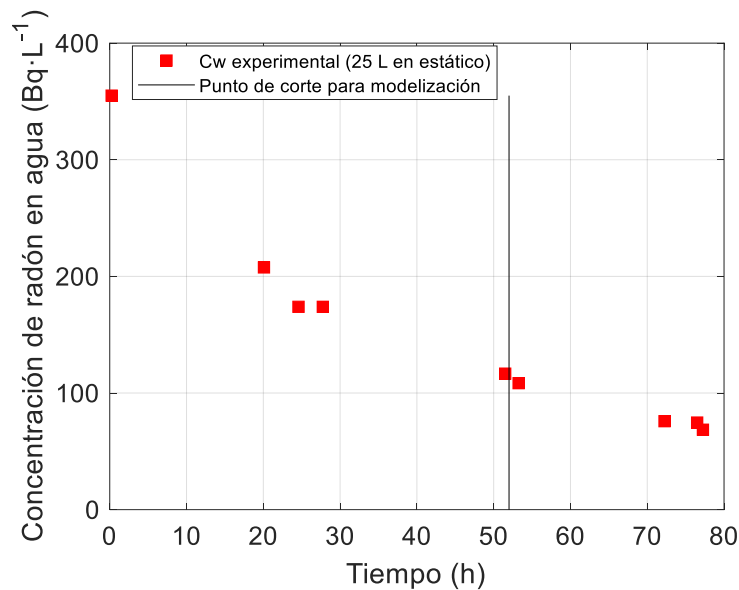


Figura 8.5. Resultados experimentales de radón en agua cuando se dispone de 25 L de agua en estático, incluyendo el punto de corte para la modelización.

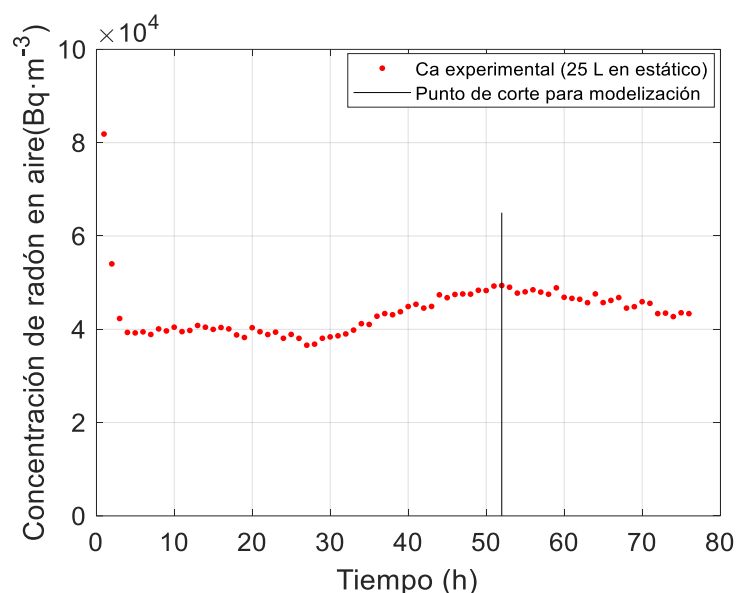


Figura 8.6. Resultados experimentales de radón en aire cuando se dispone de 25 L de agua en estático, incluyendo el punto de corte para la modelización.

A partir de estos resultados experimentales se obtiene, mediante la iteración, el siguiente valor del coeficiente de velocidad de transferencia cuando el agua del equipo experimental se encuentra en estado estático:

$$k = (1.4 \pm 0.14) \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$$

Este valor indica que la liberación o transferencia del gas radón desde la superficie del agua es un proceso relativamente lento.

Según la literatura consultada, en ausencia de perturbaciones externas y, por tanto, en condiciones de estanqueidad, la velocidad de transferencia oscila entre $1.98 \cdot 10^{-4}$ y $6.33 \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ (Calugaru et. al, 2002). En este caso, el coeficiente obtenido analíticamente se sitúa en el mismo rango para condiciones similares de ensayo.

En el proceso iterativo para obtener el coeficiente de velocidad, el algoritmo planteado calcula, en función del tiempo, valores de concentración de radón en agua, cuya estimación se muestra en la siguiente Figura 8.7.

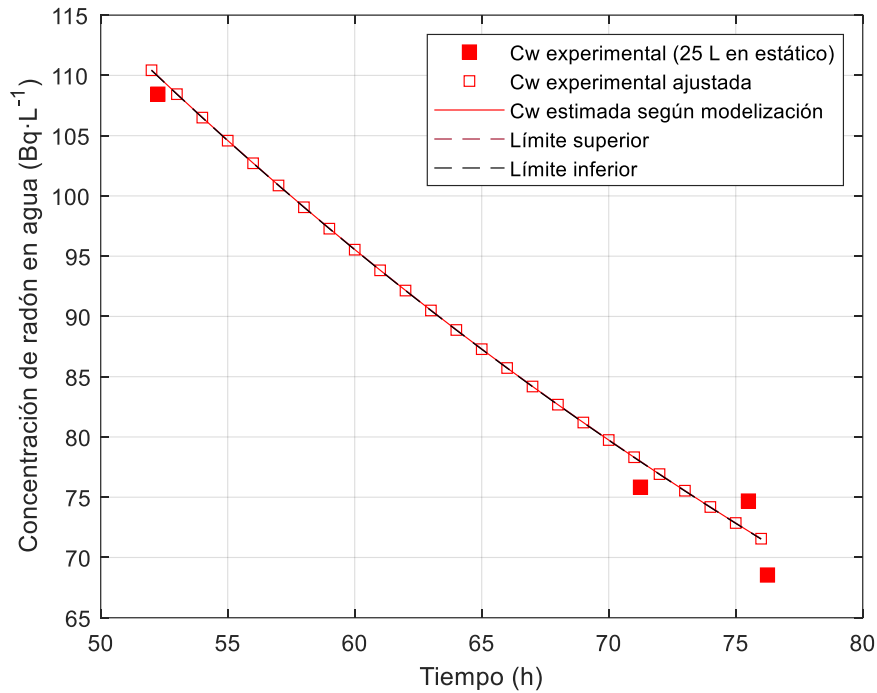


Figura 8.7. Resultados de concentración de radón en agua (C_w) experimental y estimada, incluyendo los límites superior e inferior en condiciones estáticas para 25 L.

En la figura anterior se representan, en un rango de entre 50 y 77 horas según las delimitaciones presentadas, los valores experimentales de radón en agua con un marcador cuadrado rojo relleno y los valores experimentales ajustados para la interpolación de puntos intermedios, con un marcador rojo vacío. La concentración de radón en agua estimada se representa mediante una línea mientras que los límites superior e inferior, presentan una tendencia punteada.

Tal y como se observa, el ajuste de los valores experimentales utilizado para las iteraciones y los valores estimados según la ecuación (8.3) coinciden con gran precisión y, por tanto, se superponen en la figura anterior. La desviación estándar del residuo calculado puede considerarse despreciable frente al orden de magnitud de las concentraciones de radón en agua con las que se trabaja.

La resolución analítica de la ecuación planteada permite obtener una desviación del residuo baja que, valida la técnica empleada de mínimos cuadrados y el cálculo, de forma satisfactoria, del coeficiente de velocidad de

transferencia en condiciones de agua estática. Los límites superior e inferior son, por tanto, prácticamente iguales al valor de la concentración de radón estimada, con un 95.5% de confianza.

La función utilizada en el algoritmo minimiza la suma cuadrática del residuo (diferencia el valor experimental y el estimado), de forma iterativa, y determina un único valor de coeficiente k , sin su incertidumbre. Para hallarla, se desarrolla un nuevo *script* en el que varía el valor del coeficiente y se analiza cuándo los resultados experimentales y estimados de concentración en agua se mantienen dentro de los límites establecidos, y a partir de qué valor de k quedan fuera. Cuando se produce la dispersión respecto del ajuste planteado inicialmente, se considera que el valor de k iterado ya no es válido y, por tanto, se puede fijar su incertidumbre. Mediante este procedimiento, se determina una incertidumbre del 10%. En la Figura 8.8 se muestran los resultados obtenidos para los dos extremos del rango válido.

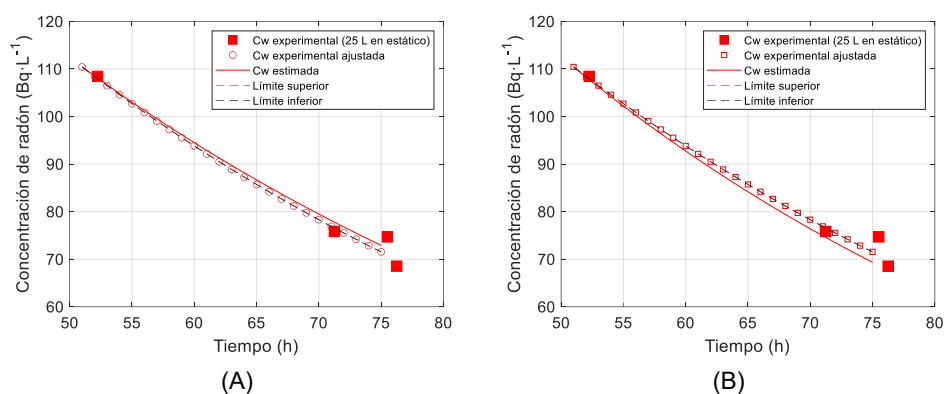


Figura 8.8. Verificación de la incertidumbre asociada al coeficiente de velocidad de transferencia. (A) $k = (1.4-10\%) \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$; (B) $k = 1.4 + 10\% \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$.

El coeficiente k , calculado analíticamente a partir del ajuste de los datos experimentales de la concentración en agua y de un valor inicial experimental de concentración en aire, permite estimar la concentración de radón en aire, según la ecuación (8.4), tal y como se muestra en la Figura 8.9.

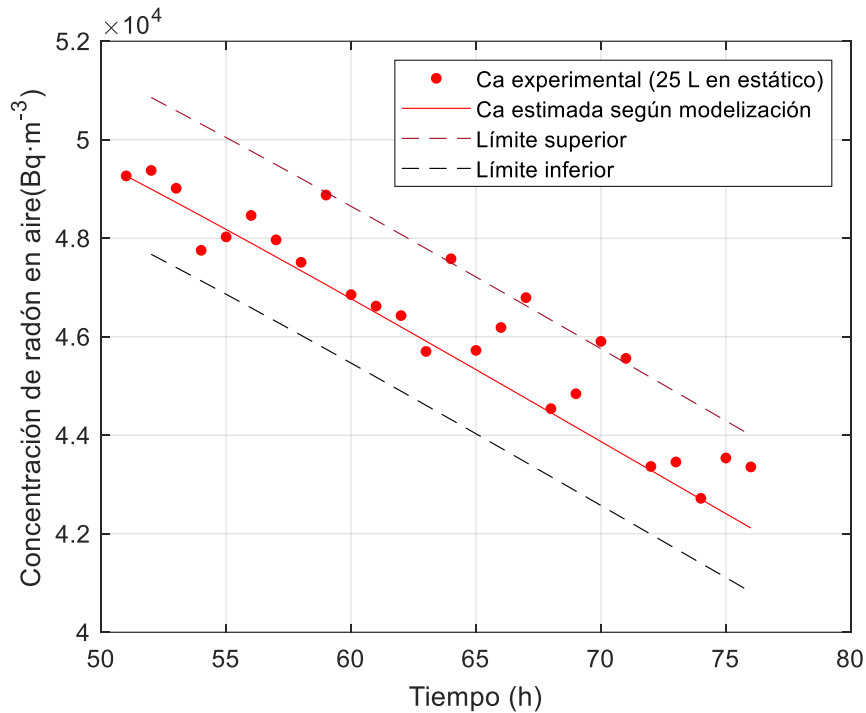


Figura 8.9. Resultados de concentración de radón en aire (Ca) experimental y estimada, incluyendo los límites superior e inferior para 25 L de agua estática.

En la figura anterior se representa la concentración de radón en aire experimental (puntos rojos), la concentración de radón estimada considerando $k = (1.4 \pm 0.14) \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ y los límites superior e inferior, calculados con un 95.5% de confianza.

La desviación estándar de los residuos calculados no puede considerarse despreciable debido a la elevada variabilidad de las mediciones en aire llevadas a cabo por el Radon Scout Plus, como se observa en la figura. Sin embargo, se verifica que el 85% de los datos experimentales se encuentra dentro de los límites calculados con un 95.5% de confianza. De nuevo, se valida el valor del coeficiente de transferencia iterado, así como el modelo exponencial de estimación de las concentraciones de radón.

Cabe destacar que este coeficiente se ha validado para unas condiciones determinadas de ensayo, no extrapolable a otros ensayos de diferentes características. No obstante, el proceso de determinación del coeficiente k se ha ratificado a través del ajuste de las concentraciones de radón en agua y aire.

Condiciones de ensayo de agua en agitación

Siguiendo el mismo procedimiento que en el apartado anterior, se calcula, mediante el mismo algoritmo iterativo, el valor del coeficiente de velocidad de transferencia en condiciones de agua en agitación.

Debido a la brusca caída de la concentración de radón en aire cuando se extrae la fuente que ha enriquecido el agua, y al aporte de radón que se sigue liberando desde el agua, de nuevo debe marcarse un punto de inicio de la iteración. A partir de las 19 horas, el comportamiento de gas radón se basa en su decaimiento, por lo tanto, se establece como punto de corte, a partir del cual se utilizan los datos, según se muestra en la siguiente Figura 8.10.

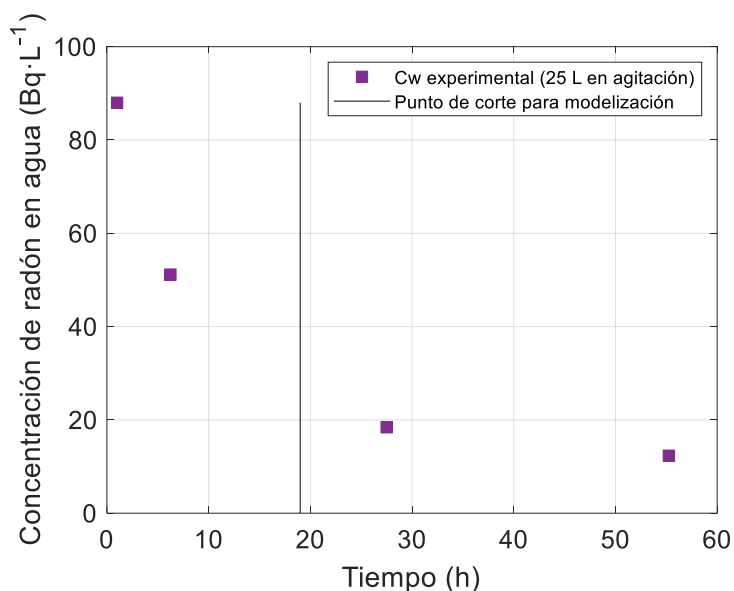


Figura 8.10. Resultados experimentales de radón en agua cuando se dispone de 25 L de agua en agitación, incluyendo el punto de corte para la modelización.

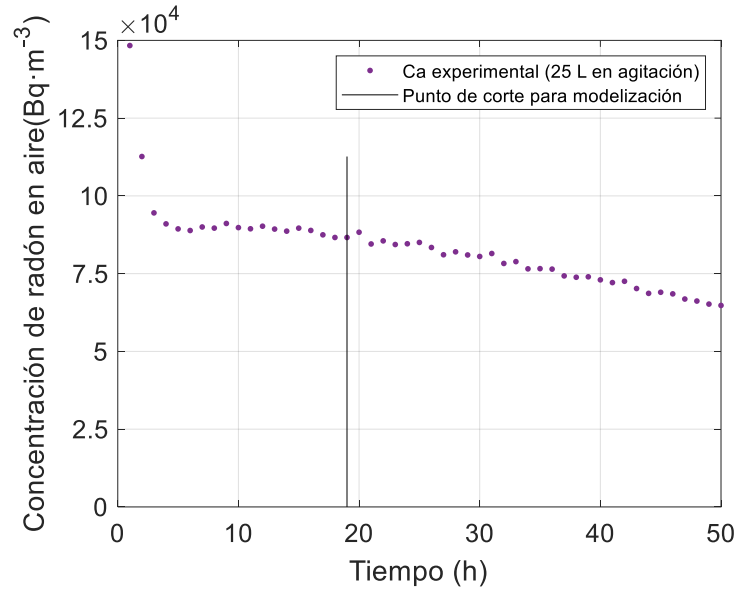


Figura 8.11. Resultados experimentales de radón en aire cuando se dispone de 25 L de agua en agitación, incluyendo el punto de corte para la modelización.

Los resultados experimentales extraídos de las gráficas anteriores, considerando que los valores de concentración de radón en agua se ajustan a una exponencial, permiten obtener el valor del coeficiente de velocidad de transferencia cuando el agua se encuentra en agitación:

$$k = (2.4 \pm 0.6) \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$$

El valor obtenido del coeficiente en este caso, indica que el proceso de liberación es superior a cuando está en condiciones de agua estática, como cabría esperar debido al efecto de la agitación y la afinidad del radón por el aire.

Este valor presenta el mismo orden de magnitud comparado con investigaciones en las que existe una baja turbulencia durante los ensayos, cuya velocidad es de $(5.04 \pm 0.72) \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ (Ongori et al., 2015). La variación entre ambos coeficientes puede deberse al grado de agitación del agua.

De forma análoga al procedimiento seguido en condiciones estáticas, el proceso iterativo requiere del cálculo de la concentración de radón en agua estimada, mediante un proceso iterativo, minimizando el residuo entre esta y el valor experimental, tal y como se muestra en la siguiente Figura 8.12.

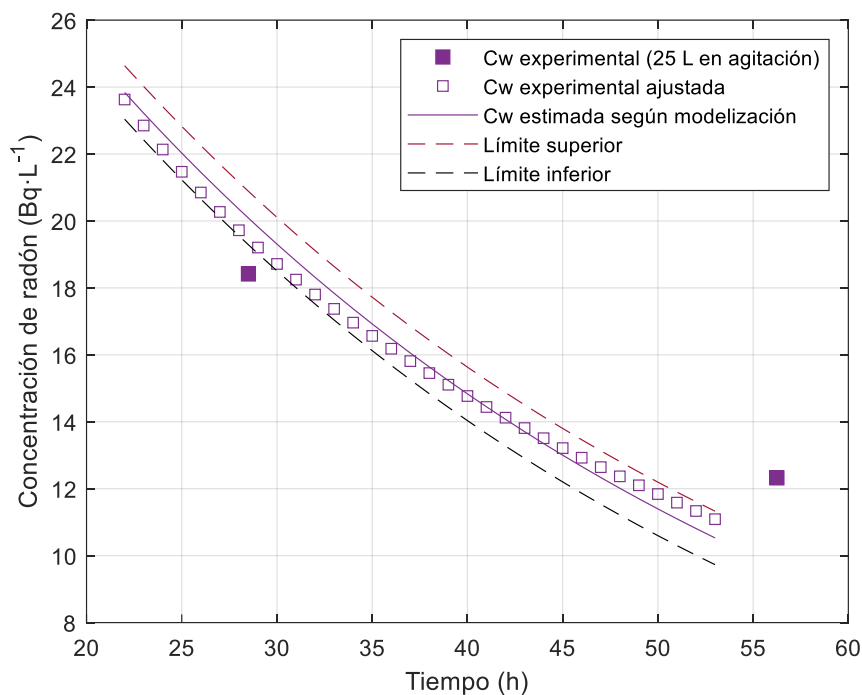


Figura 8.12. Resultados de concentración de radón en agua (C_w) experimental y estimada, incluyendo los límites superior e inferior para 25 L de agua en condiciones de agitación.

En esta figura se presentan los valores de concentración de radón en agua en el rango de entre 20 y 56 horas aproximadamente. Marcados con un cuadrado morado relleno, la concentración de radón en agua experimental y con un cuadro sin relleno, el ajuste exponencial de los valores experimentales. Esta interpolación permite calcular el residuo entre el valor estimado y el experimental. La desviación de los residuos es 400, y se definen los límites superior e inferior con una confianza del 95.5% tal y como se observa en la representación anterior.

Los valores ajustados de la concentración en agua se encuentran dentro de los límites, por lo que se valida tanto la técnica empleada en el algoritmo como el valor del coeficiente de velocidad de transferencia en condiciones de agua en agitación.

Siguiendo el mismo procedimiento que el utilizado anteriormente, se ha determinado la incertidumbre asociada al coeficiente k para condiciones de agua en agitación. El valor a partir del cual la concentración deja de ajustarse al modelo planteado si sitúa en torno al 25%. A continuación, en la Figura 8.13 se muestran los resultados obtenidos para los dos extremos del rango:

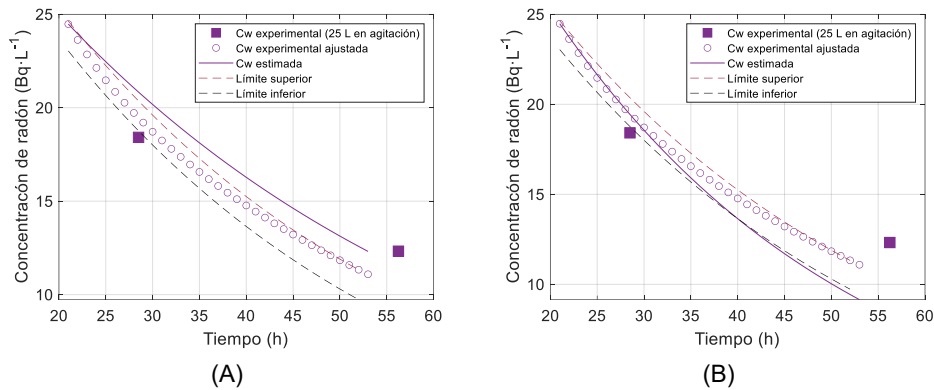


Figura 8.13. Verificación de la incertidumbre asociada al coeficiente de velocidad de transferencia en agitación. (A) $k = (2.4 - 25\%) \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$; (B) $k = (2.4 + 25\%) \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$.

A partir del parámetro k , y teniendo en cuenta los valores de concentración de radón en agua ajustados para el mismo paso de tiempo que los de aire, se estima la concentración de radón en aire tal y como se muestra en la Figura 8.14.

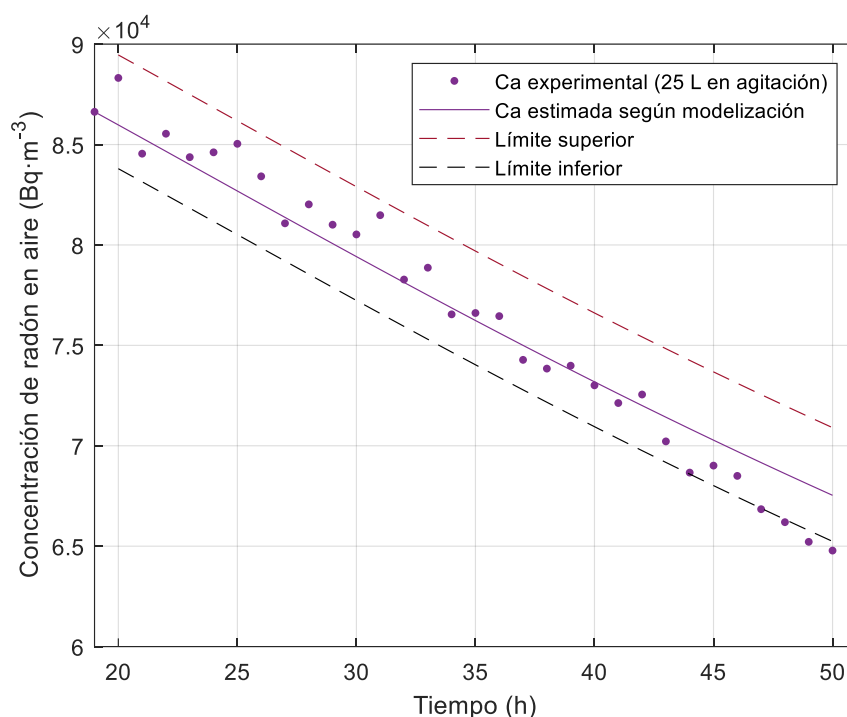


Figura 8.14. Resultados de concentración de radón en aire (Ca) experimental y estimada, incluyendo los límites superior e inferior para 25 L de agua en condiciones de agitación.

La figura anterior muestra los valores de concentración de radón experimentales (puntos morados) así como la concentración estimada, calculada según la ecuación (8.4), considerando el valor del coeficiente de velocidad como $k = (2.4 \pm 0.6) \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$.

La desviación estándar de los residuos calculados es inferior al 10%, pero, en este caso, los valores experimentales se encuentran distribuidos a ambos lados de la recta de la concentración estimada. El 87.5% de los datos experimentales se encuentra dentro de los límites, que, de nuevo, se calculan con un 95.5% de confianza.

Esta modelización de los resultados de concentración de radón en aire, ajustados a los estimados, permiten validar el coeficiente de velocidad de transferencia.

Este coeficiente es válido para las condiciones ensayadas, y tampoco es extrapolable a otros ensayos en los que se varíen los parámetros.

8.3.3. Discusión de resultados

Mediante las ecuaciones planteadas y el algoritmo desarrollado con la herramienta Matlab, se han obtenido los valores de coeficiente de velocidad de transferencia del gas radón (k) fijando como volumen de control la región del medio acuoso. En condiciones de agua estática y en agitación este coeficiente es de $(1.4 \pm 0.14) \cdot 10^{-3}$ y $(2.4 \pm 0.6) \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ respectivamente, calculado mediante la técnica de minimización de la suma de cuadrática de las diferencias entre el valor experimental de concentración y el estimado.

Se verifica que la velocidad de transferencia en condiciones de agitación es el doble que en estático y, por tanto, se libera el doble de radón al aire. Comparados con otras investigaciones, se observa que ambos se encuentran entre los rangos establecidos para nula y baja turbulencia.

El coeficiente k permite hallar la concentración de radón en aire estimada a partir de un único valor inicial experimental.

El ajuste de los resultados obtenidos, valida el modelo de difusión de radón en agua y en aire desarrollado.

8.4. Transferencia de radón agua-aire. Modelización resultados experimentales en crecimiento.

En este apartado se determina la emanación de radón en agua y se compara con la emanación de radón en aire, calculada a partir de los resultados experimentales del apartado 8.2.

Se presenta la modelización de los resultados experimentales de radón en agua llevados a cabo en condiciones estáticas y de agitación durante el proceso de enriquecimiento y acumulación del gas en el medio acuoso.

La particularidad de estos ensayos reside en la fuente de generación de radón (F2), permanece en el interior del equipo experimental durante todo el periodo de ensayo. La fuente supone un aporte continuo de gas.

8.4.1. Metodología

Los resultados previos de este capítulo determinan la velocidad de transferencia del gas radón desde el agua enriquecida hasta el aire en el interior del equipo experimental, mediante el desarrollo analítico de las ecuaciones formuladas que predicen su comportamiento en ambos medios.

En este caso, partiendo de un coeficiente k conocido, se incluye un nuevo término al balance de materia: la generación constante de radón debida al aporte de la fuente F2, tal y como se presenta en el Capítulo 7.

El volumen de control seleccionado sigue siendo el agua, dada la elevada eficiencia que presenta el detector Hidex 600 SL, por lo que el modelo planteado particularizando para los ensayos llevados a cabo, se muestra en la siguiente ecuación, ya desarrollada en el Capítulo 4.

$$\begin{aligned}
 C'_w(T_1) &= C_w(T_0) e^{-\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right)(T_1 - T_0)} \\
 &+ \frac{S k \alpha}{V_w} \left[\frac{C_{a \text{ exp}}(T_1) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} + C_{a \text{ exp}}(T_0) e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_0}}{2} \right] e^{-\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right) T_1} \\
 &+ \frac{E}{V_w} \left[\frac{1 - e^{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right)(T_0 - T_1)}}{\left(\frac{S k}{V_w} + \lambda\right)} \right].
 \end{aligned} \tag{8.5}$$

Se define la tasa de emanación, E ($\text{Bq} \cdot \text{h}^{-1}$), como el flujo de radón emanado en el agua, E' ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$) por unidad de superficie de contacto entre agua y aire, S (m^2), según la siguiente ecuación

$$E = E' S. \tag{8.6}$$

El parámetro E se obtiene mediante el desarrollo de un nuevo algoritmo iterativo, también basado en la inicialización de este factor, utilizando la técnica que minimiza el error cuadrático de la diferencia (residuo) entre la concentración de radón en agua experimental y la estimada, de forma iterativa, de la ecuación (8.5).

La tasa de emanación y el valor inicial de concentración de radón permiten estimar la concentración de radón en aire en cada caso. De nuevo, se particulariza según los datos de los que se dispone en el ensayo

$$\begin{aligned}
 C'_a(T_1) &= C'_a(T_0) e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right)(T_1 - T_0)} \\
 &+ \frac{S k}{V_a} \left[\frac{C_{w \text{ exp}}(T_1) e^{\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_1} + C_{w \text{ exp}}(T_0) e^{\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_0}}{2} \right] e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right) T_1} \\
 &+ \frac{E}{V_w} \left[\frac{1 - e^{-\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right)(T_1 - T_0)}}{\left(\frac{S k \alpha}{V_a} + \lambda\right)} \right].
 \end{aligned} \tag{8.7}$$

El procedimiento seguido utilizando la herramienta de cálculo Matlab, es:

- Ajuste de los datos experimentales de la concentración de radón en agua en condiciones de acumulación, tanto para agua estática como en agitación. Se requiere de un mayor volumen de datos, en el mismo paso de tiempo, que los de concentración de radón en aire por lo que se realiza un ajuste de estos, con $R^2 > 0.90$.
- Determinación de la tasa de emanación de gas radón en el medio acuoso, según la ecuación (8.7). En esta iteración, se obtiene también la concentración estimada de radón en agua que valida el valor del parámetro E iterado.

La modelización se lleva a cabo según lo establecido para la determinación del coeficiente de velocidad: se pasa como valor de entrada un único valor de concentración de radón en agua y se inicializa un valor de tasa de emanación. Los parámetros S , k , α , λ y V_w o V_a (Según si se estima la concentración en agua o en aire) se mantienen constantes. En la Tabla 8.6. se muestran todos los parámetros utilizados en la modelización.

Tabla 8.6. Parámetros utilizados para la modelización de la ecuación (8.5) y (8.7).

Símbolo	Parámetro	Valor
$C_a(t)$	Concentración de radón en aire para tiempo de <i>iteración</i> i	Datos experimentales, Capítulo 7 ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)
$C_w(t_i)$	Concentración de radón en agua para tiempo de <i>iteración</i> i	Ajuste de los datos experimentales, Capítulo 7 ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ convertidos a $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)
S	Superficie agua-aire	$1.93\cdot 10^{-1} \text{ (m}^2\text{)}$
k	Coeficiente de velocidad de transferencia	$k_{\text{estático}} = 1.4\cdot 10^{-3} \text{ (m}\cdot\text{h}^{-1}\text{)}$ $k_{\text{turbulencia}} = 2.4\cdot 10^{-3} \text{ (m}\cdot\text{h}^{-1}\text{)}$
α	Coeficiente de Ostwald	$2.73\cdot 10^{-1} \text{ (m}\cdot\text{s}^{-1}\text{)}$
λ	Constante de desintegración	$7.56\cdot 10^{-3} \text{ (h}^{-1}\text{)}$
V_w	Volumen de agua	$2.5\cdot 10^{-3} \text{ (m}^3\text{)}$ $5.0\cdot 10^{-3} \text{ (m}^3\text{)}$
V_a	Volumen de aire	$2.5\cdot 10^{-3} \text{ (m}^3\text{)}$ $5.0\cdot 10^{-3} \text{ (m}^3\text{)}$
E	Tasa de emanación de radón en el agua	Por determinar ($\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$)
T_0, T_1	Intervalos de tiempo para cada iteración	$T_1 = T_0 + 1 \text{ (h)}$

8.4.2. Resultados

Se presentan los resultados obtenidos en la determinación de emanación de radón en agua cuando el medio acuoso está estático y en agitación. El proceso iterativo, basado en hallar el valor de E , minimiza el error cuadrático de la suma de las diferencias entre la concentración experimental y la estimada y, por tanto, ofrece también estos últimos valores de C'_w .

La tasa de emanación de radón en el medio acuoso, E_{agua} , obtenida del ajuste de la ecuación (8.5) es:

$$E_{\text{agua}} = 53.25 \pm 0.53 \text{ Bq}\cdot\text{h}^{-1}$$

La incertidumbre asociada al valor de E_{agua} obtenido en la iteración se ha realizado siguiendo el procedimiento planteado para la asociada al coeficiente de velocidad de transferencia, k .

Durante el cálculo iterativo, el algoritmo desarrollado calcula en cada paso de tiempo un valor de concentración estimada de radón en agua, que, a su vez, permite obtener, con la mayor precisión posible, el valor de la emanación.

En cada caso, se calculan los límites inferior y superior con un 95.5% de confianza, a partir de la desviación estándar de los residuos. Cada uno de los ajustes llevados a cabo se muestra en las siguientes figuras:

- Ensayo de 25 L de agua estática: Figura 8.15
- Ensayo de 50 L de agua estática: Figura 8.16
- Ensayo de 25 L de agua en agitación: Figura 8.17
- Ensayo de 50 L de agua en agitación: Figura 8.18

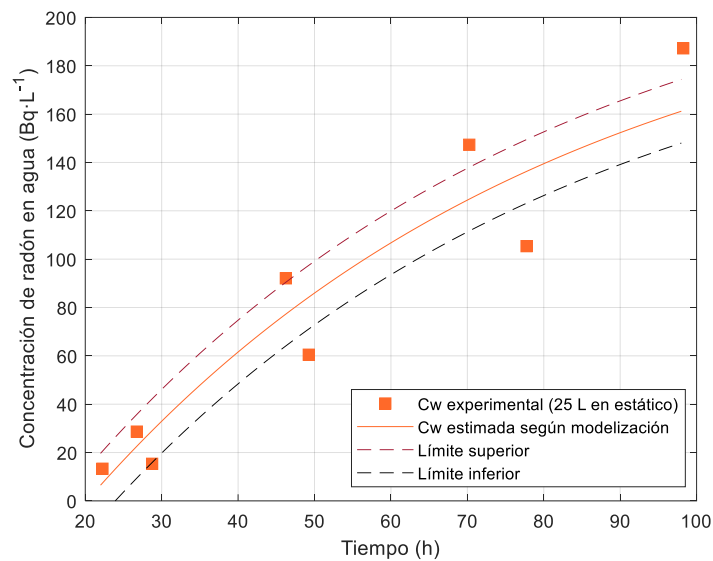


Figura 8.15. Resultados de concentración de radón en agua estimada (C'_w) en 25 L de agua estática.

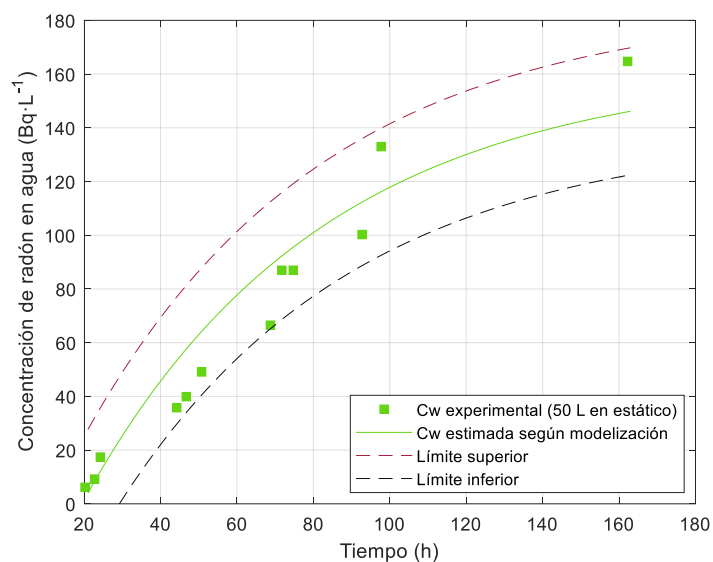


Figura 8.16. Resultados de concentración de radón en agua estimada (C'_w) en 50 L de agua estática.

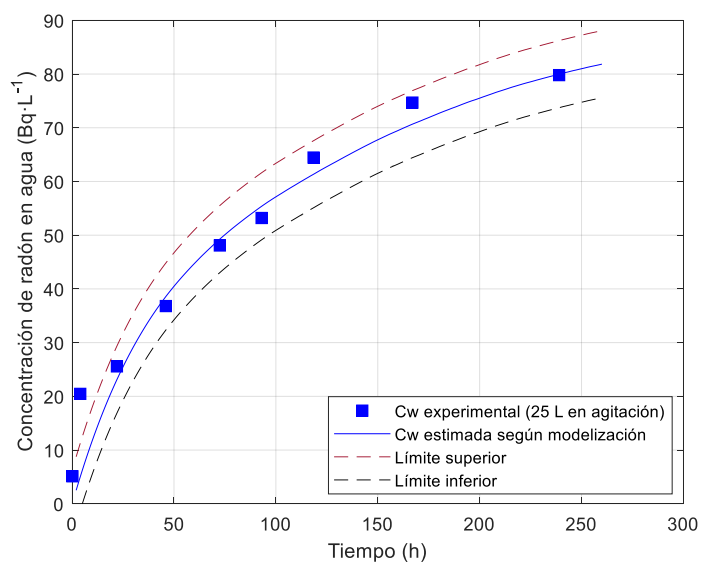


Figura 8.17. Resultados de concentración de radón en agua estimada (C'_w) en 25 L de agua en agitación.

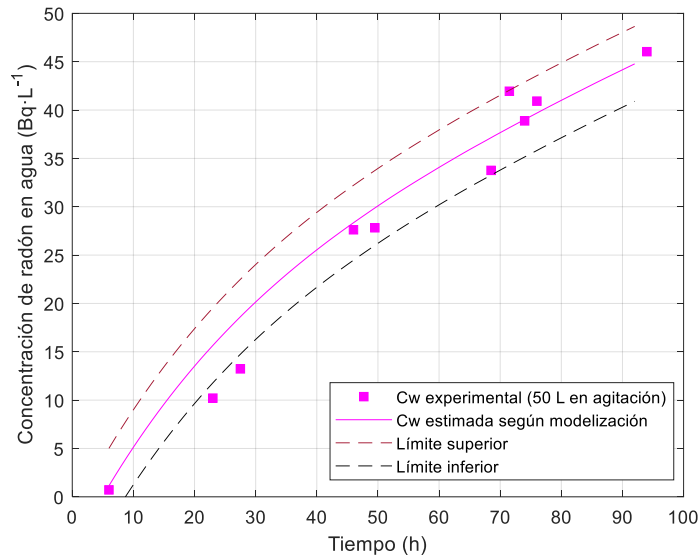


Figura 8.18. Resultados de concentración de radón en agua estimada (C'_w) en 50 L de agua en agitación.

Las figuras anteriores representan los valores de concentración de radón en agua experimental, el valor estimado según la modelización y los límites superior e inferior según lo comentado previamente.

Se observa que, en general, la mayoría de los ensayos se ajustan con precisión al modelo planteado, sobre todo para 50 L de agua estática y en agitación, y para 25 L en agitación. Todos los valores experimentales se encuentran en torno al valor de la concentración de radón en agua estimada de forma iterativa y dentro de los límites calculados con 95.5% de confianza.

En los ensayos con 25 L de agua en estático, aunque casi todos los valores experimentales se sitúan entre los límites calculados, se observa una ligera desviación que es debida al ajuste inicial de la concentración de radón en agua, ya que en 25 L en estático los valores medidos no siguen una tendencia exponencial de crecimiento clara y el error asociado puede expandirse durante la minimización.

Con el fin de optimizar la modelización llevada a cabo, se analizan los tres términos de la ecuación (8.5) por separado. En las cuatro condiciones ensayadas, el primer término es el de mayor peso puesto que cuantifica la cantidad de radón que ya se dispone en el agua para cada paso de tiempo, mientras que el segundo término es, para 25 L estáticos, hasta 2500 veces inferior. El tercer término oscila en todos los casos entre 1 y 3 unidades de millar

y es entre 20-60 veces superior del segundo término, ya que recoge el valor de emanación de la fuente F2. En los ensayos con agua en agitación, el segundo de los términos tiene una mayor importancia debido al efecto de la turbulencia, que facilita la liberación de radón al aire. El tercer término puede considerarse despreciable cuando se estima la concentración de radón en agua.

Análogamente a lo realizado para la concentración en agua, a continuación, se obtiene la concentración de radón en aire estimada en función del tiempo según la ecuación (8.7), considerando el coeficiente de velocidad de transferencia determinado para cada condición de ensayo (agua estática y en agitación), la concentración de radón en agua, la tasa de emanación y un valor inicial de concentración de radón en aire.

Los resultados se han representado en escala logarítmica, para mostrar la evolución de la concentración de radón en aire y en escala lineal, según los valores de la concentración experimental y estimada e incluyendo los límites superior e inferior en las siguientes figuras:

- Ensayo de 25 L de agua estática: Figura 8.19 y Figura 8.20.
- Ensayo de 50 L de agua estática: Figura 8.21 y Figura 8.22.
- Ensayo de 25 L de agua en agitación: Figura 8.23 y Figura 8.24.
- Ensayo de 50 L de agua en agitación: Figura 8.25 y Figura 8.26.

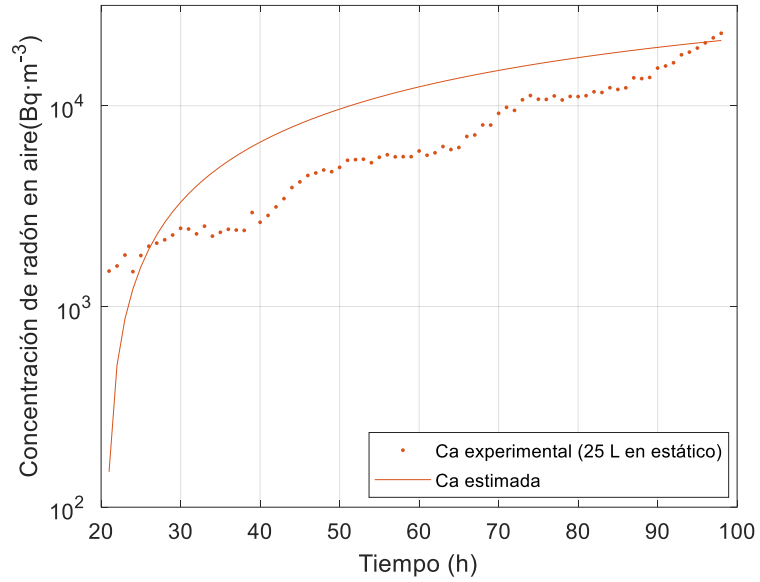


Figura 8.19. Resultados de concentración de radón en aire (C'_a) en 25 L de agua estática. Escala logarítmica.

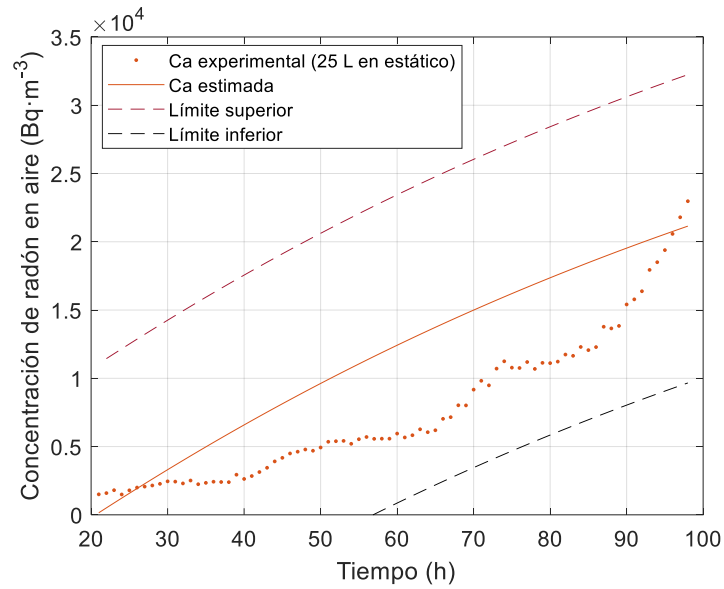


Figura 8.20. Resultados de concentración de radón en aire (C'_a) en 25 L de agua estática. Ampliación a escala lineal.

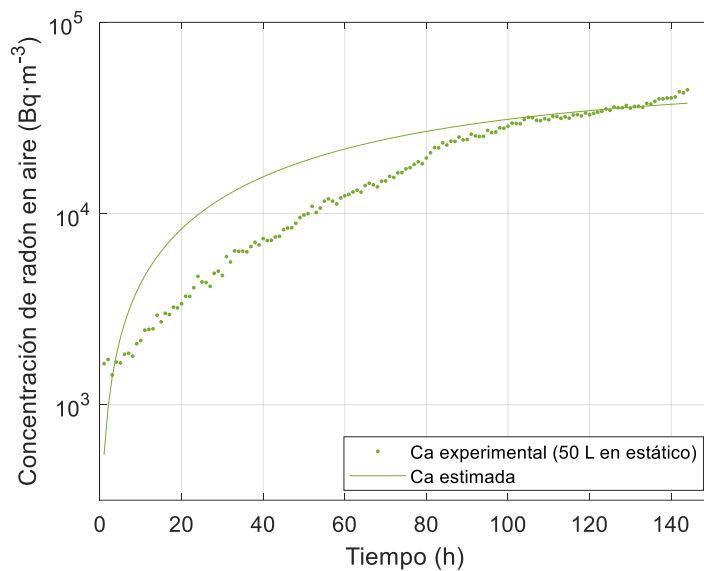


Figura 8.21. Resultados de concentración de radón en aire (C'_a) en 50 L de agua estática. Escala logarítmica.

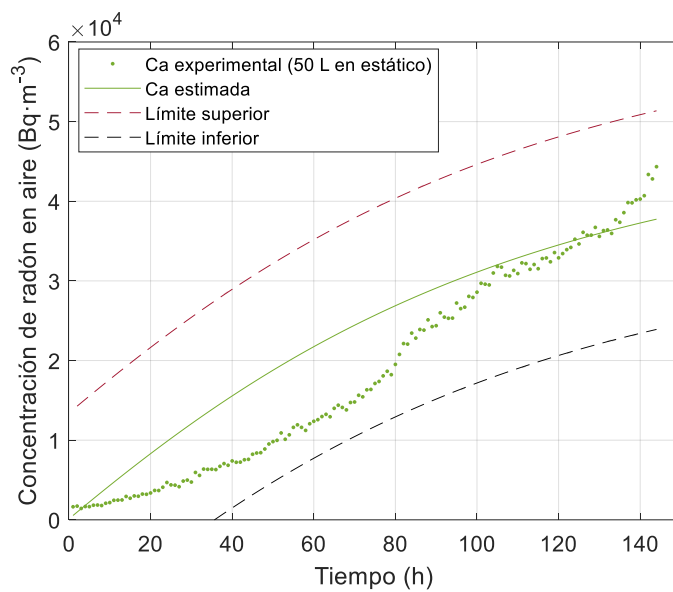


Figura 8.22. Resultados de concentración de radón en aire (C'_a) en 50 L de agua estática. Ampliación a escala lineal.

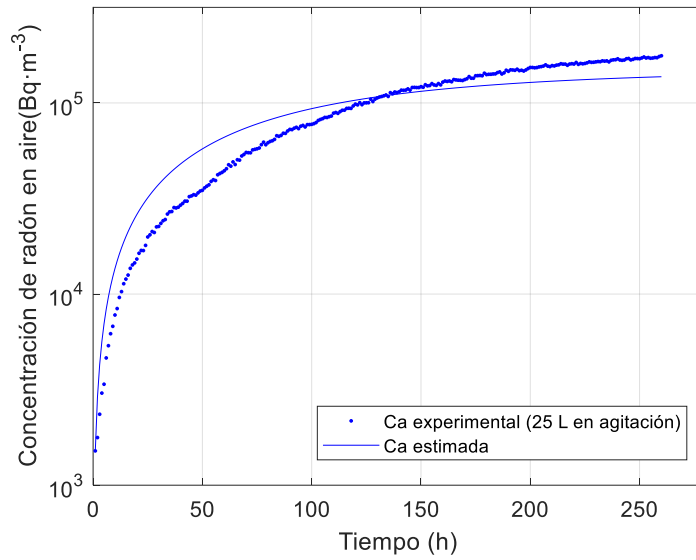


Figura 8.23. Resultados de concentración de radón en aire (C'_a) en 25 L de agua en agitación. Escala logarítmica.

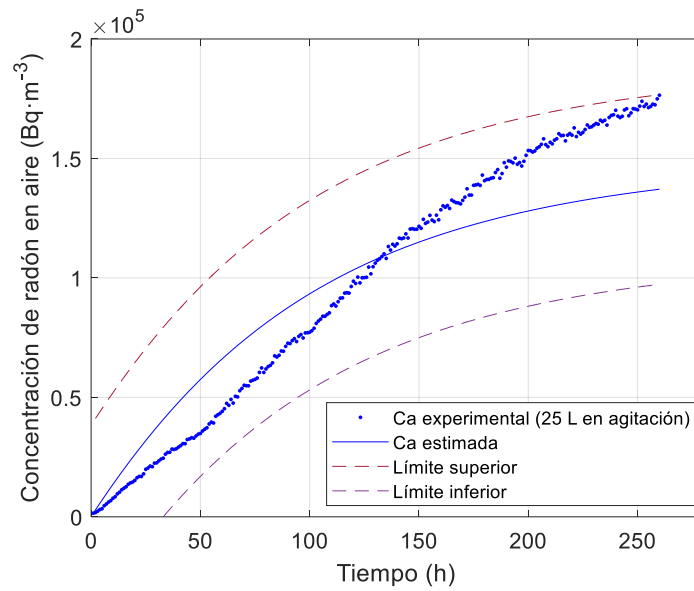


Figura 8.24. Resultados de concentración de radón en aire (C'_a) en 25 L de agua en agitación. Ampliación a escala lineal.

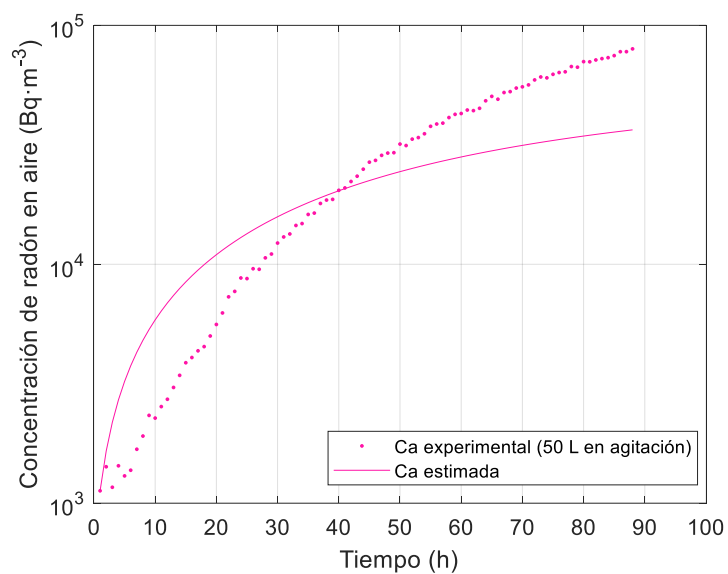


Figura 8.25. Resultados de concentración de radón en aire (C'_a) en 50 L de agua en agitación. Escala logarítmica.

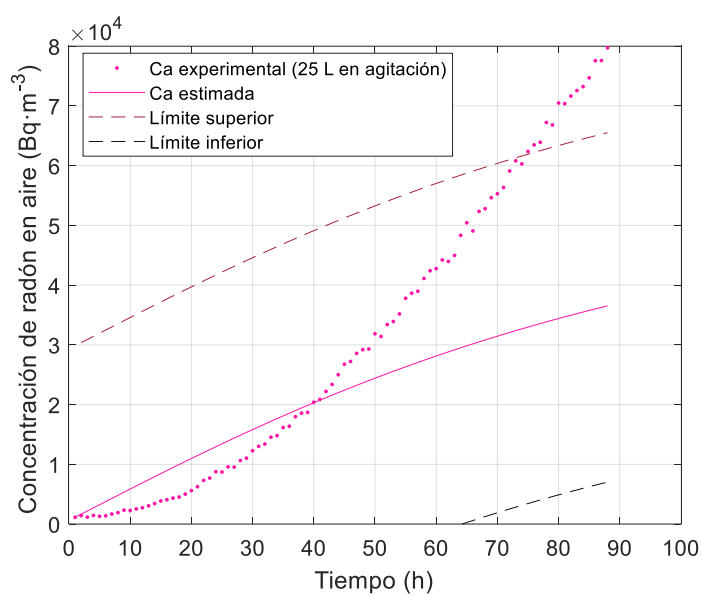


Figura 8.26. Resultados de concentración de radón en aire (C'_a) en 50 L de agua en agitación. Ampliación a escala lineal.

En las figuras anteriores se han representado las concentraciones de radón en aire experimental y estimada, y los límites inferior y superior calculados con un 95.5% de confianza.

Se observa que para 25 L en estático y en agitación, así como para 50 L en estático, los valores experimentales se encuentran dentro de los límites calculados. Sin embargo, cuando se dispone de 50 L de agua en agitación, a partir de las 40 horas, los valores experimentales se alejan de los valores estimados y, más allá de las 70 horas, se sitúan fuera del límite superior establecido.

Los resultados de radón en aire estimado presentan un ajuste exponencial, según se ha desarrollado en la ecuación (8.7). Sin embargo, tal y como se observa en las figuras, los valores experimentales difieren y oscilan constantemente. Destaca la elevada variabilidad de la concentración de radón en aire experimental medida con el Radon Scout Plus, que crece escalonadamente.

La concentración de radón experimental medida verifica el efecto barrera del agua sobre la liberación del radón en aire, causando una liberación más variable que en ausencia del medio acuoso, si se compara con los resultados de radón en aire del apartado 8.2.

A partir del ajuste estimado, se evidencia la clara necesidad de disponer de un detector de mayor precisión para las mediciones de radón en aire cuando éste es liberado desde el agua.

Comparación entre la emanación en agua y en aire

En el apartado anterior, se ha obtenido el valor de emanación de radón en agua en unidades de $\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$ durante el proceso de enriquecimiento del medio acuoso.

El valor de tasa de emisión de la fuente F2, en el bidón de 120 L capacidad, es de $(1.09 \pm 0.018) \cdot 10^3$ ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{h}^{-1}$), y por tanto, la tasa de emanación de radón en aire es de

$$E_{\text{aire}} = 130.80 \pm 2.16 \text{ Bq}\cdot\text{h}^{-1}$$

Teniendo en cuenta el valor de la tasa de emanación de radón en agua, $E_{\text{agua}} = (53.25 \pm 0.53) \text{ Bq}\cdot\text{h}^{-1}$, se verifica que $E_{\text{agua}} < E_{\text{aire}}$. Se observa que, en agua es un 41% inferior a la del aire, debido principalmente la resistencia que ofrece cada medio al paso del gas radón. Cuando únicamente se dispone de aire en el depósito, el radón se libera con mayor facilidad que si dispone de un medio, el agua, de mayor densidad, que dificulta su liberación.

Esto también se ha comprobado en distintas investigaciones en las que se analiza el comportamiento del gas radón en medios porosos mediante el estudio

de la distancia de retroceso, que determina si el átomo se mueve hacia el interior del grano o hacia la superficie. Se observa que esta distancia es mucho mayor en aire que en agua ($53 \cdot 10^3$ nm frente a $77 \cdot 10^3$ nm) (IAEA, 2013), por lo que los átomos de radón se ven frenados dentro de los poros, generando una menor emanación en el medio acuoso. Teóricamente, según literatura consultada (IAEA, 2013), la liberación del radón desde un mineral varía en función de si el espacio poroso que lo conforma contiene agua (poros saturados) o contiene aire (poros no saturados). En el primer caso, el átomo de Rn es capturado por el medio, aumentando la probabilidad de que permanezca en ese espacio poroso lleno de agua. Sin embargo, si estos poros contienen aire (y no están saturados de agua), el átomo puede recorrer libremente el espacio intersticial hasta ser liberado.

8.4.3. Discusión de resultados

En este apartado se obtiene el valor de la tasa de emanación ($\text{Bq} \cdot \text{h}^{-1}$) de la fuente F2 en el agua para las diferentes condiciones de ensayo.

Se utiliza un algoritmo iterativo que permite hallar el valor de E mediante la minimización de la suma cuadrática del error entre el valor experimental de la concentración de radón en agua y el valor estimado de forma iterativa, según la ecuación desarrollada (8.4).

Se obtiene un valor de tasa de emanación de $E_{\text{agua}} = (53.25 \pm 0.53) \text{ Bq} \cdot \text{h}^{-1}$. Este valor se compara con la tasa de emanación en aire, que es un 41% superior, como cabría esperar por la diferencia de densidad entre los dos medios.

La representación de las concentraciones estimadas de radón en agua permite validar el valor iterado de la emanación. Se observa que, para 25 L y 50 L en agitación, los valores experimentales se encuentran dentro de los límites calculados, con un 95.5% de confianza, mientras que, para 50 L en estático, hay una ligera desviación. En 25 L estático, la precisión del modelo es menor, con diversos puntos fuera de los límites establecidos. Se verifica la importancia del ajuste inicial de los datos experimentales y de la repetición de los ensayos utilizando detectores de radón en aire de mayor precisión, así como un mayor número de muestras de radón en agua.

Se estima la concentración de radón en aire (C'_a) y se observa que para un volumen de 25 L en agitación y en estático, así como para 50 L en estático, los valores experimentales se mantienen dentro de los límites establecidos mientras que, para 50 L en agitación, difieren de los valores estimados mediante la iteración. Destaca la necesidad de utilizar un detector de mayor precisión que cuantifique, sin tanta variabilidad, la concentración de radón en aire cuando éste es liberado desde el agua.

8.5. Secuenciación para la estimación de las concentraciones

En este apartado se resume la secuencia de pasos a realizar para determinar el coeficiente de velocidad de transferencia y la tasa de emanación de la fuente en caso de no disponer de estos parámetros. Asimismo, se plantea el procedimiento a seguir para estimar las concentraciones de radón en agua y en aire y los datos necesarios para ello.

En los ensayos en los que coexisten dos medios, agua y aire, es necesario determinar el coeficiente de velocidad de transferencia, que cuantifica cuánto radón se transfiere del medio acuoso al aire. Su determinación se basa en el desarrollo de un algoritmo iterativo que, partiendo de datos experimentales de radón en agua y en aire, obtiene un valor constante del coeficiente transferencia k , que garantiza que la diferencia entre el valor experimental y el estimado sea el mínimo (mínimos cuadrados). El valor obtenido de k se valida a través del valor de la concentración estimada de radón en agua. Si esta coincide con la concentración experimental medida, el coeficiente puede darse como aceptable.

En la Figura 8.27 se muestra la secuenciación para estimar la concentración de radón en aire en condiciones de decaimiento, si se desconoce el valor del coeficiente de velocidad de transferencia o si éste ya es conocido.

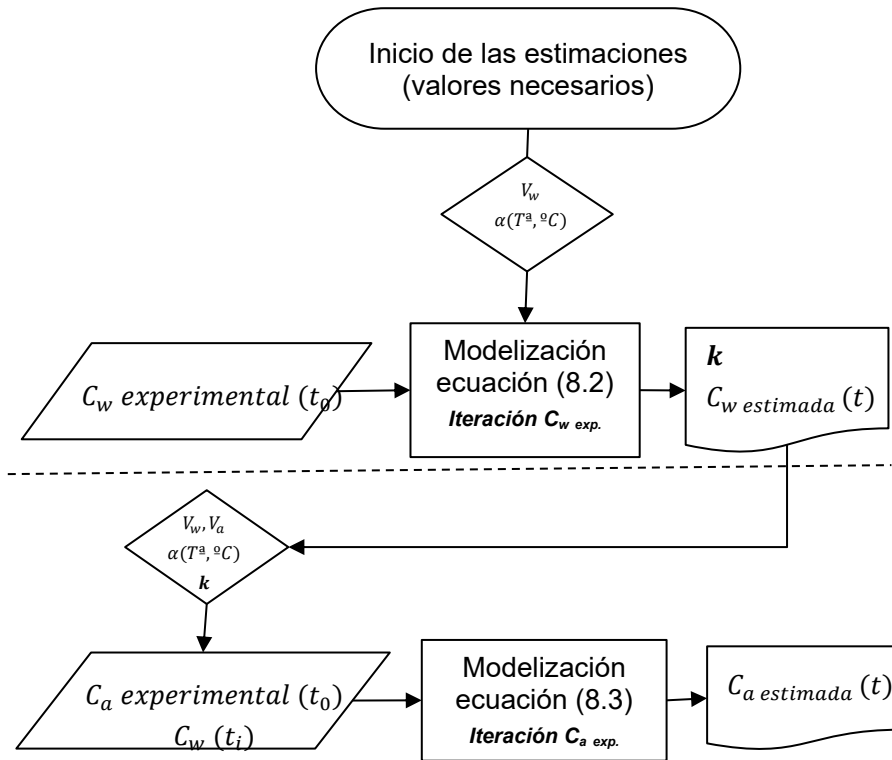


Figura 8.27. Diagrama de flujo del proceso de estimación de la concentración de radón en aire en contacto con agua en condiciones de disminución del gas.

En esta figura se muestra el proceso a seguir en la estimación de los diferentes parámetros. Inicialmente, si no se dispone del coeficiente de velocidad de transferencia, el procedimiento seguido para su cálculo es el mismo que el ejecutado en esta Tesis Doctoral, en condiciones de decaimiento, a partir de un valor inicial de concentración de radón en agua y conociendo los parámetros de volumen de agua y el coeficiente de Ostwald. Se debe utilizar la ecuación 8.2 para obtener el valor de k , iterando los valores de concentración en agua experimentales mediante el método de los trapecios.

En el caso de disponer ya del coeficiente k , se requiere de un valor inicial de concentración de radón en aire para estimar su evolución en función del tiempo, así como valores de concentración de radón en agua ($C_w(t_i)$) siendo $i \approx 5$ puntos en intervalo de 2 -3 días.

Las medidas en agua son medidas fiables que permiten obtener ajustes precisos sin necesitar de un elevado número de medidas como sí sucede con

los niveles en aire. Mediante la ecuación 8.3 podrán obtenerse entonces los valores estimados de concentración de radón en el aire.

En condiciones de acumulación de radón, el proceso iterativo seguido es muy similar al del diagrama anterior, teniendo en cuenta que inicialmente es necesario determinar la tasa de emanación de la fuente en agua a partir de los datos experimentales medidos de concentración de radón en el medio acuoso.

Una vez obtenido, considerando el coeficiente de velocidad de transferencia, el volumen de agua y de aire del emplazamiento, el coeficiente de Ostwald calculado a partir de la temperatura, y un valor inicial de radón en aire, se puede predecir la concentración de radón en aire, según se muestra en el diagrama de la Figura 8.28.

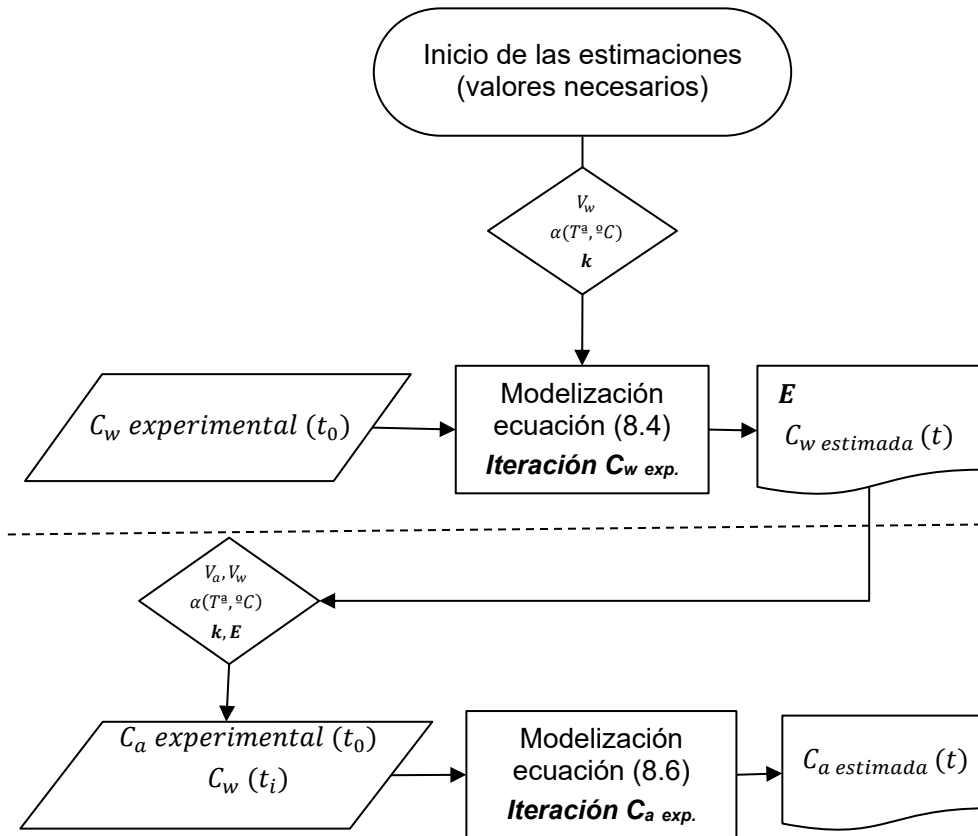


Figura 8.28. Diagrama de flujo del proceso de estimación de la concentración de radón en aire en condiciones de aumento del gas.

En este caso, existen también dos posibles secuenciaciones. En el caso de no disponer de la tasa de emanación E , esta se calcula a partir de un valor inicial de concentración de radón en agua, considerando el volumen de agua muestreado, el coeficiente de velocidad de transferencia k y la constante de Ostwald, tal y como se ha realizado en esta investigación, a partir de la modelización de la ecuación (8.4).

Una vez calculada la tasa (o si ya se dispone de ella), se puede estimar la concentración de radón en aire, a partir de un valor inicial experimental y, de nuevo, con los valores experimentales de concentración de radón en agua ajustados. Se introducen en el modelo (ecuación 8.6) como valores constantes: los volúmenes de aire y agua, la constante de Ostwald, y el coeficiente de velocidad de transferencia, k , para obtener los valores estimados de concentración de radón en aire.

CAPÍTULO 9

CONCLUSIONES

En este capítulo, se presentan las conclusiones de la Tesis Doctoral, el grado de cumplimiento de los objetivos planteados inicialmente, así como las líneas futuras de investigación, desarrolladas a partir de los resultados obtenidos.

Las conclusiones finales de la presente Tesis Doctoral son las siguientes:

- 1) Se ha diseñado un equipo experimental consistente en un bidón de polietileno de alta densidad con cierre de tipo ballesta, que se ha comprobado que cumple las condiciones de hermeticidad requeridas por la normativa ISO 11665-3, garantizando que las pérdidas del sistema son mínimas.
- 2) Se ha analizado la homogeneidad del gas radón en agua en el bidón a través de la extracción de muestras a dos alturas (16 y 24 cm). El sesgo calculado cumple con los criterios internos del laboratorio por lo que se considera que la distribución del radón en agua es homogénea. Por tanto, la altura de extracción de las muestras no es relevante para los resultados. Por cuestiones operativas, se mantiene este punto a 24 cm de la base.
- 3) El método de extracción de las muestras de agua seleccionado es el del grifo, frente a la jeringa. Calculado el sesgo y la ratio, se verifica que ambos cumplen con criterios internos del laboratorio por lo que se considera que ambos métodos de extracción son válidos. Sin embargo, a efectos prácticos, se selecciona el grifo como método de extracción.

- 4) Se ha comprobado experimentalmente que la acumulación de radón en aire aumenta cuanto mayor es la actividad de la fuente generadora. A su vez, para una misma fuente, en los dos bidones se ha observado que se alcanza una mayor concentración de radón en aire cuanto menor es el volumen de aire en el interior del bidón. Se mantiene una ratio proporcional a la del volumen de aire en los valores de concentración de radón en aire acumulada.
- 5) Se ha comprobado de manera experimental que el enriquecimiento de radón en agua es mayor cuanto menor es el volumen en el que se acumula el gas. Asimismo, en condiciones de agua estática, la concentración es mayor que cuando se encuentra en agitación, dado que el proceso de burbujeo facilita su liberación al aire. Esto se valida tanto para 25 L como para 50 L.
- 6) En aire, se ha observado una acumulación de gas radón similar cuando se dispone de 25 L y 50 L de agua, con una variación entre las concentraciones que no supera el 15% en condiciones de agua estática y en agitación. Esto es debido a que se compensa el menor volumen de agua en el que se difunde el radón, con el mayor volumen de aire y viceversa.
- 7) En el proceso de decaimiento de gas radón en 25 L de agua, se evidencia que, en condiciones de agitación, la acumulación del gas es inferior a causa del burbujeo, que facilita la liberación del radón.
- 8) La concentración de radón en aire durante el proceso de decaimiento es mayor en condiciones de agitación dado que ya se parte inicialmente de una concentración más elevada. Se observa que, en condiciones de agua estática, hay un ligero incremento de la concentración de radón en el aire debido al radón residual del agua. En turbulencia, el efecto del burbujeo mantiene prácticamente constante la transferencia.
- 9) Se ha observado experimentalmente que la acumulación de gas en aire presenta una tendencia de crecimiento exponencial, que se ajusta a la ecuación planteada con un coeficiente de determinación R^2 superior a 0.98. Se han determinado, para las tres fuentes y en los dos bidones, los valores de tasa de emisión Φ ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{h}^{-1}$) y concentración máxima alcanzable en cada caso ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$), verificando que ambos parámetros son mayores cuanto menor es el volumen de aire en el que se acumula el radón. La tasa de emanación E ($\text{Bq}\cdot\text{h}^{-1}$), se mantiene constante para una misma fuente independientemente del volumen de aire existente.

- 10) El desarrollo de las ecuaciones dinámicas para la transferencia de radón agua-aire ha permitido determinar el coeficiente de velocidad de transferencia k a partir de una minimización de errores cuadráticos. En agua, en condiciones estáticas, el coeficiente es $(1.4 \pm 0.14) \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ y para agua en agitación $(2.4 \pm 0.6) \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$. Se verifica que la velocidad de transferencia del gas en el agua es mayor en los procesos de turbulencia, dado que facilitan su liberación al aire.
- 11) Se ha calculado, de forma iterativa, la concentración estimada de radón en agua y en aire, en condiciones de decaimiento. En ambos casos, los valores experimentales se sitúan dentro de los límites superior e inferior, calculados con un 95.5% de confianza por lo que el modelo dinámico planteado resulta coherente.
- 12) La tasa de emanación del radón en agua se ha estimado mediante una minimización de errores cuadráticos en condiciones de acumulación de radón en agua. Se ha determinado que es un 41% inferior a la tasa de emanación en aire, siendo $E_{\text{agua}} = (53.25 \pm 0.53) \text{ Bq} \cdot \text{h}^{-1}$ frente a la tasa $E_{\text{aire}} = (130.80 \pm 2.16) \text{ Bq} \cdot \text{h}^{-1}$. Esto es debido a la diferencia de densidad del medio y a la resistencia que ofrece cada fase al paso del radón.
- 13) A partir de la estimación de la concentración de radón en agua y en aire, calculadas de forma iterativa, se ha validado el modelo dinámico planteado y, por tanto, el valor de la tasa de emanación obtenida. Se observa que la mayoría de los ensayos, excepto uno, se ajustan al modelo planteado y se sitúan entre los límites superior e inferior, calculados con un 95.5% de confianza.
- 14) Los resultados obtenidos a nivel experimental y el desarrollo del modelo matemático han permitido estudiar el proceso de difusión del gas radón a través del aire y en la situación de contacto agua-aire.
- 15) Se han observado algunas discrepancias entre los valores experimentales y los estimados en condiciones de acumulación, que pueden deberse a variables no controladas en los ensayos experimentales y a la precisión del detector de radón en aire. Estas hipótesis se validarán y corregirán en trabajos futuros.

Mejoras y trabajos futuros

A partir de los resultados experimentales obtenidos y de las modelizaciones llevadas a cabo, se han observado mejoras a desarrollar en trabajos futuros:

- Diseñar un nuevo dispositivo (soporte) que permita medir la concentración de radón en aire a diferentes alturas para verificar que es homogénea también en este medio.
- Facilitar el enriquecimiento constante de radón, desde fuera del tanque experimental que, a su vez, permita aumentar o disminuir su concentración según las necesidades del laboratorio.
- Ensayar diferentes rangos de turbulencia en agua para obtener el coeficiente de velocidad de transferencia y acotar más los resultados, ya que esta **k** es necesaria para predecir concentración de radón en aire.
- Realizar los ensayos con menor volumen de agua, lo que supondría un enriquecimiento del agua en un menor tiempo, y un aumento en el número de ensayos realizados.
- Desarrollar un protocolo de medida para radón en agua, que permita disponer de un mayor número de medidas en el mismo instante de tiempo que las medidas de radón en aire.
- Mejorar el equipo experimental para medir la concentración de radón en aire desde fuera del montaje. De esta manera, se podrían utilizar detectores de mayor tamaño y mayor precisión.
- Aplicar los modelos dinámicos desarrollados a una instalación real para predecir y validar las concentraciones de radón en agua y en aire que se alcanzarían a partir de un grupo reducido de valores experimentales.

CAPÍTULO 10

CONTRIBUCIONES EN INVESTIGACIÓN

A continuación, se presentan las publicaciones de investigación, la participación en congresos internacionales y nacionales, así como premios y reconocimientos obtenidos durante la ejecución de la presente Tesis Doctoral.

10.1 Publicaciones de investigación

Título: Study of the influence of radon in water on radon levels in air in a closed location.

Autores: A.Noverques, B.Juste, M.Sancho, B.García-Fayos, G.Verdú

Revista: Radiation Physics and Chemistry, 171 108761.

Año: 2020

Título: Study of potential capacity as adsorbent of Moringa oleifera substrates for treatment of radon contaminated air in indoor spaces: Preliminary test

Autores: B.García-Fayos, B.Juste, M.Sancho,, J.M. Arnal, A.Noverques, G.Verdú.

Revista: Radiation Physics and Chemistry, 167, 108262.

Año: 2020

Título: Study of Radon concentration evolution in air and water in a closed and static compartment

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho, and G. Verdú.

Revista: Proceedings Book. 21st Topical Meeting of the Radiation Protection and Shielding Division.

Año: 2020

Título: Estudio de la exhalación de radón en función de la cantidad de humedad en el suelo.

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho. G. Verdú.

Revista: Nuclear España, nº 404.

Año: 2019

Título: Experimental radon exhalation measurements: Comparison of different techniques.

Autores: A. Noverques, G. Verdú, B. Juste, M. Sancho.

Revista: Radiation Physics and Chemistry, 155, 319-322.

Año: 2019

10.2 Participación en congresos internacionales

Título: Radon detection on a Spanish natural gas well using electrets and Lucas cell

Autores: A. Noverques, B. Juste, B. Mora, A. Arribas y G. Verdú.

Congreso: 14th International Conference on Radiation Shielding and 21st Topical Meeting of the Radiation Protection and Shielding Division

Ciudad: Seattle

Fecha: 25-29 septiembre 2022

Título: Modelization of radon emanation generated by natural and artificial sources as a laboratory scale

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho, y G. Verdú.

Congreso: International Symposium on Radiation Physics (ISRP-15)

Online

Fecha: 6-12 diciembre 2021

Título: Analysis of the influence of sampling procedure in water radon measurements.

Autores: A. Noverques, M. Sancho, B. Juste, y G. Verdú.

Congreso: The European Nuclear Young Generation Forum, ENYGF'21
Online **Fecha:** 27-30 septiembre 2021

Título: Application of the Closed Compartment Model (CCM) for a radon source characterization

Autores: A. Noverques, M. Sancho, B. Juste, y G. Verdú.

Congreso: IRPA15, 15th International Congress of the International Radiation Protection Association
Online **Fecha:** 11-15 mayo 2021

Título: Study of Radon concentration evolution in air and water in a closed and static compartment

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho y G. Verdú.

Congreso: Radiation Protection and Shielding División, RPSD.
Online **Fecha:** noviembre 2020

Título: Study of the influence of radon in water on radon levels in air in a closed location

Autores: A. Noverques, G. Verdú, B. Juste y M. Sancho.

Congreso: 3rd International Conference on Dosimetry and its Applications. ICDA-3.
Ciudad: Lisboa **Fecha:** 27-31 mayo 2019

Título: Analysis of the influence of soil moisture in the concentration of exhaled radon.

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho y G. Verdú.

Congreso: 3rd International Conference on Dosimetry and its Applications. ICDA-3.
Ciudad: Lisboa **Fecha:** 27-31 mayo 2019

Título: Study of radon concentration in water and its possible influence in radon concentration in air.

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho y G. Verdú.

Congreso: International Symposium of Radiation Physics (ISRP-14)

Ciudad: Córdoba (Argentina) **Fecha:** 7-11 octubre 2018

Título: Study of radon concentration in wetland Mediterranean water using continuous monitoring.

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho y G. Verdú.

Congreso: 20th Topical Meeting of ANS Radiation Protection and Shielding División (RPSD).

Ciudad: Santa Fe (USA) **Fecha:** 26-31 julio 2018

Título: Study of radon exhalation as a function of soil water content

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho y G. Verdú.

Congreso: Symposium on Radiation Measurements and Applications (SORMA XVII).

Ciudad: Michigan, USA. **Fecha:** 11-14 julio 2018

10.3 Participación en congresos nacionales

Título: Estimación y análisis del coeficiente de velocidad de transferencia de radón

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho y G. Verdú.

Congreso: 47ª Reunión Anual. Sociedad Nuclear Española

**Pendiente aceptación*

Ciudad: Cartagena **Fecha:** 26-30 septiembre 2022

Título: Detección de radón en un pozo español de gas natural

Autores: A. Noverques, B. Juste, B. Mora, A. Arribas y G. Verdú.

Congreso: 47ª Reunión Anual. Sociedad Nuclear Española

**Pendiente aceptación*

Ciudad: Cartagena **Fecha:** 26-30 septiembre 2022

Título: Modelización de los niveles de radón en aire generados a partir de una fuente artificial y otra natural en un recipiente hermético

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho y G. Verdú.

Congreso: 46 Reunión Anual. Sociedad Nuclear Española

Ciudad: Granada

Fecha: 5-8 octubre 2021

Título: Validación experimental del Modelo de Compartimento Cerrado aplicado al radón

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho y G. Verdú.

Congreso: 7º Congreso Conjunto 23 SEFM.SEPR28. Online 2021

Online

Fecha: 11-15 mayo 2021

Título: Evolución de la transferencia de radón del agua al aire a escala piloto

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho y G. Verdú.

Congreso: Reunión Virtual, Sociedad Nuclear Española

Online

Fecha: 23-28 septiembre 2019

Título: Estudio de la exhalación de radón en función de la cantidad de humedad en el suelo.

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho y G. Verdú.

Congreso: 44ª Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española

Ciudad: Ávila

Fecha: 26-28 septiembre 2018

Título: Estudio de la concentración de radón en la Marjal de Peñíscola.

Autores: A. Noverques, B. Juste, M. Sancho y G. Verdú.

Congreso: 44ª Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española

Ciudad: Ávila

Fecha: 26-28 septiembre 2018

10.4 Premios y reconocimientos

Título: Mejor Ponencia de la Reunión Virtual de la Sociedad Nuclear Española 2020. *Evolución de la transferencia de radón del agua al aire a escala piloto*

Fecha celebración: 15-06-2021

Título: Mejor Ponencia de la Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española 2018 *Estudio de la exhalación de radón en función de la cantidad de humedad en el suelo*

Fecha celebración: 28-02-2019

Bibliografía

Alonso Hernández, H. (2016). El radón en suelos, rocas, materiales de construcción y aguas subterráneas de las Islas Canarias Orientales (Doctoral dissertation).

Barbosa-Lorenzo, R., Ruano-Ravina, A., Caramés, S. C., & Barros-Dios, J. M. (2015). Radón residencial y cáncer de pulmón. Un estudio ecológico en Galicia. *Medicina Clínica*, 144(7), 304-308.

Barros-Dios JM, Barreiro MA, Ruano-Ravina A, et al. Exposure to residential radon and lung cancer in Spain: a population-based case-control study. *Am J Epidemiol*. 2002;156:548-55.

Barros-Dios JM, Ruano-Ravina A, Pérez-Rós M, et al. Residential radon exposure, histologic types, and lung cancer risk. A case-control study in Galicia, Spain. *Cancer Epidemiol Biomark Prev Publ Am Assoc Cancer Res Cosponsored. Cancer Epidemiol Biomark Prev*. 2012;21:951-8.

Baudron, P., Cockenpot, S., Lopez-Castejon, F., Radakovitch, O., Gilabert, J., Mayer, A., ... & Claude, C. (2015). Combining radon, short-lived radium isotopes and hydrodynamic modeling to assess submarine groundwater discharge from an anthropized semiarid watershed to a Mediterranean lagoon (Mar Menor, SE Spain). *Journal of Hydrology*, 525, 55-71.

Broad Energy Germanium Detectors. Mirion Technologies. Canberra, 2016: <https://www.gammadata.se/assets/Uploads/BEGe-SS-C49318.pdf>

Calugaru D.G., Crolet J.M. Identification of radon transfer velocity coefficient between liquid and gaseous phases. *C. R. Mecanique* 330 (2002) 377–382.

Celaya Gonzalez, S. (2018). Estudio del comportamiento del ^{222}Rn en los procesos de recarga-descarga en acuíferos: simulación en laboratorio y aplicación a un caso real.

Chen, J., Rahman, N. M., & Atiya, I. A. (2010). Radon exhalation from building materials for decorative use. *Journal of environmental radioactivity*, 101(4), 317-322.

Cherta, A., Rodellas, V., García-Solsona, E., García-Orellana, J., Baixeras, C., & Balta, V. M. (2009). Resultados preliminares de los niveles de radón en la marjal de Peñíscola. *Radioprotección*, 17(60).

Consejo de Seguridad Nuclear (2011). Instrucción IS-33, de 21 de diciembre de 2011, del Consejo de Seguridad Nuclear, sobre criterios radiológicos para la protección frente a la exposición a la radiación natural. Boletín Oficial del Estado, n.º 22, pp. 6833-6838. España.

Consejo de Seguridad Nuclear (CSN). El mapa del potencial de radón en España (11 de mayo de 2021). <https://www.csn.es/mapa-del-potencial-de-radon-en-espana>

Consejo de Seguridad Nuclear (CSN). Monografía sobre las radiaciones (26 de abril de 2020). <https://www.csn.es/documents/10182/bb15bfe3-dcbf-4bac-84d5-37dce5db6f1d>

Cosma, C., Moldovan, M., Dicu, T., Kovacs, T., Radon in water from Transylvania (Romania), Radiation Measurements Vol. 43, 8 (2008), p. 1423-1428

Council Directive 2013/59/Euratom of 5 December 2013 (2014) Basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, and repealing Directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom. Off J Eur Union 57.

Council Directive 2013/51/Euratom of 22 October 2013 laying down requirements for the protection of the health of the general public with regard to radioactive substances in water intended for human consumption. Off. J. Eur. Union 296, 12–21 (2013).

Curso de Supervisor de Instalaciones Radiactivas. CIEMAT.

Darby, S., Hill, D., Auvinen, A., Barros-Dios, J. M., Baysson, H., Bochicchio, F., & Doll, R. (2005). Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies. *Bmj*, 330(7485), 223.

Darby, S., Hill, D., Deo, H., Auvinen, A., Barros-Dios, J. M., Baysson, H., & Doll, R. (2006). Residential radon and lung cancer—detailed results of a collaborative analysis of individual data on 7148 persons with lung cancer and 14 208 persons without lung cancer from 13 epidemiologic studies in Europe. *Scandinavian journal of work, environment & health*, 1-84.

Documento Básico HS. Salubridad. Código Técnico de la Edificación. Ministerio de Fomento, 2019.

Dosis de radiación (2010). Consejo de Seguridad Nuclear. Referencia SBD-0.07

Elío, J., Ortega, M. F., Nisi, B., Mazadiego, L. F., Vaselli, O., Caballero, J., & Pous, J. (2015). Evaluation of the applicability of four different radon measurement techniques for monitoring CO₂ storage sites. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 41, 1-10.

Fernández, A., Sainz, C., Celaya, S., Quindós, L., & Rábago, D. (2021). A New Methodology for Defining Radon Priority Areas in Spain. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 18(3), 1352.

Font, L., Baixeras, C., & Moreno, V. (2008). Indoor radon levels in underground workplaces of Catalonia, Spain. *Radiation Measurements*, 43, S467-S470

Frutos Vázquez, B.; Olaya Adán, M. Protección frente a la inmisión de gas radón en edificios (2010). Colección Informes Técnicos. Referencia INT-04.20. Consejo de Seguridad Nuclear.

Fuente, M., Rabago, D., Herrera, S., Quindos, L., Fuente, I., Foley, M., & Sainz, C. (2018). Performance of radon monitors in a purpose-built radon chamber. *Journal of Radiological Protection*, 38(3), 1111.

Fuente, M (2015). Puesta a punto de un sistema de medida de radón en agua aplicado al estudio de acuíferos Trabajo final de Grado en Física. Universidad de Cantabria.

García-Talavera, M., López, FJ. Cartografía del potencial de radón en España (2019). Colección de Informes Técnicos. Referencia INT-0.4.41. Consejo de Seguridad Nuclear.

Geología web. Consultado 2021:
<https://geologiaweb.com/minerales/uraninita/>

Gruber, V.; Maringer, Landstetter, F.J. C. "Radon and other natural radionuclides in drinking water in Austria: Measurement and assessment". *Applied Radiation and Isotopes*, Volume 67, Issue 5, 2009.

Hassan, N. M., Hosoda, M., Ishikawa, T., SORIMACHI, A., SAHOO, S. K., TOKONAMI, S., & FUKUSHI, M. (2009). Radon migration process and its influence factors; review. *Japanese Journal of Health Physics*, 44(2), 218-231.

Hernández, P., Pérez, N., Salazar, J., Reimer, M., Notsu, K., & Wakita, H. (2004). Radon and helium in soil gases at Cañadas caldera, Tenerife, Canary Islands, Spain. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 131(1-2), 59-76.

International Atomic Energy Agency (IAEA); Measurement and calculation of radon releases from NORM residues, Technical Reports Series No. 474 (2013).

Información sobre el gas radón, Universidad de Santiago de Compostela. <http://fpsalmon.usc.es/lar/esp/servicios/servicioradon/inforadon.php>. Año 2011

Instrucción IS-05 de 26 de febrero 2003, del Consejo de Seguridad Nuclear, en la que se definen los valores de exención para nucleídos según se establece en las tablas A y B del anexo I del Real Decreto 1836/1999.

Instrucción IS-33, de 21 de diciembre de 2011, del CSN sobre criterios radiológicos para la protección frente a la exposición a la radiación natural
Krewski, D., Lubin, J. H., Zielinski, J. M., Alavanja, M., Catalan, V. S., Field, R. W., ... & Wilcox, H. B. (2005). Residential radon and risk of lung cancer: a combined analysis of 7 North American case-control studies. *Epidemiology*, 137-145.

Jiránek, M., & Kotrbatá, M. (2011). Radon diffusion coefficients in 360 waterproof materials of different chemical composition. *Radiation protection dosimetry*, 145(2-3), 178-183.

Jiránek, M., & Hůlka, J. (2001). Applicability of various insulating materials for radon barriers. *Science of the total environment*, 272(1-3), 79-84.

Jornadas sobre calidad en el control de la radiactividad ambiental. Consejo de Seguridad Nuclear. Septiembre 2010. Cáceres.

Juste, B., Ortiz, J., Verdú, G., & Martorell, S. (2015). Air radon concentration decrease in a waste-water treatment plant. *Radiation protection dosimetry*, 164(4), 497-501.

Krewski, D., Lubin, J. H., Zielinski, J. M., Alavanja, M., Catalan, V. S., William Field, R., & Wilcox, H. B. (2006). A combined analysis of North American case-control studies of residential radon and lung cancer. *Journal of Toxicology and Environmental Health, Part A*, 69 (7-8), 533-597.

Kulali, F. Determination of Radon Exposure During the Geothermal Bath Therapies. (2021) *Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi*, (22), 347-351.

Llorca J, Bringas-Bollada M, Quindós-Poncela LS. Falta de asociación entre las concentraciones de radón en el domicilio y el cáncer de pulmón en Cantabria. *Arch Bronconeumol*. 2007; 43:696.

Lubin, J. H., Wang, Z. Y., Boice Jr, J. D., Xu, Z. Y., Blot, W. J., De Wang, L., & Kleinerman, R. A. (2004). Risk of lung cancer and residential radon in China: pooled results of two studies. *International Journal of Cancer*, 109(1), 132-137.

Masaro L., Zhu X.X. Physical models of diffusion for polymer solutions, gels and solids. *Prog. Polym. Sci.* 24 (1999) 731–775.

Megonigal, J. P., Brewer, P. E., & Knee, K. L. (2020). Radon as a natural tracer of gas transport through trees. *The New Phytologist*.

Montaña, M., Camacho, A., Devesa, R., Vallés, I., Céspedes, R., Serrano, I., & Barjola, V. (2013). The presence of radionuclides in wastewater treatment plants in Spain and their effect on human health. *Journal of cleaner production*, 60, 77-82.

Moreno, V., Baixeras, C., Font, L., & Bach, J. (2008). Indoor radon levels and their dynamics in relation with the geological characteristics of La Garrotxa, Spain. *Radiation Measurements*, 43(9-10), 1532-1540.

Moreno, V., Bach, J., Baixeras, C., & Font, L. (2014). Radon levels in groundwaters and natural radioactivity in soils of the volcanic region of La Garrotxa, Spain. *Journal of environmental radioactivity*, 128, 1-8.

Moreno, V., Bach, J., Zarroca, M., Font, L., Roqué, C., & Linares, R. (2018). Characterization of radon levels in soil and groundwater in the North Maladeta Fault area (Central Pyrenees) and their effects on indoor radon concentration in a thermal spa. *Journal of environmental radioactivity*, 189, 1-13.

Neri, M., Giammanco, S., Ferrera, E., Patanè, G., & Zanon, V. (2011). Spatial distribution of soil radon as a tool to recognize active faulting on an active volcano: the example of Mt. Etna (Italy). *Journal of environmental radioactivity*, 102(9), 863-870.

Nikolov, J., Todorovic, N., Pantic, T. P., Forkapic, S., Mrdja, D., Bikit, I., & Veskovic, M. (2012). Exposure to radon in the radon spa Niška Banja, Serbia. *Radiation Measurements*, 47(6), 443-450.

Noverques Medina, A. (2017). Desarrollo de metodologías para la realización de mediciones de exhalación de Radón 222. Trabajo Final de Máster

Nussbaum, E., & Harsh, J. B. (1958). Radon solubility in fatty acids and triglycerides. *The Journal of Physical Chemistry*, 62(1), 81-84.

Ongori, J. N., Lindsay, R., & Mvelase, M. J. (2015). Radon transfer velocity at the water–air interface. *Applied Radiation and Isotopes*, 105, 144-149.

Organización Mundial de la Salud (OMS). 2 de febrero de 2021. El radón y sus efectos en la salud. <https://www.who.int/es/news-room/fact-sheets/detail/radon-and-health>.

Othman M.R., Lee O.E and Fernando W.J.N. Gas Adsorption and Surface Diffusion on 5Å Microporous Adsorbent in Transition and Turbulent Flow Region. *IIUM Engineering Journal*, Vol. 7, No. 1, 2006.

Piedecausa-García, B., Chinchón Payá, S., Morales Recio, M. Á., & Sanjuán Barbudo, M. Á. (2011). Radiactividad natural de los materiales de construcción. Aplicación al hormigón. Parte I. Radiación externa: índice de riesgo radiactivo.

Quindós Poncela, L. S.. Radón, un gas radiactivo de origen natural en su casa. Universidad de Cantabria. Consejo de Seguridad Nuclear, 1995.

Rábago Gómez, D. (2013). Aplicación de un sistema de monitorización de la concentración de gas radón en el agua de una instalación termal. Trabajo Fin de Carrera. Repositorio Abierto de la Universidad de Cantabria.

Real Decreto 732/2019, de 20 de diciembre, por el que se modifica el Código Técnico de la Edificación, aprobado por el Real Decreto 314/2006, de 17 de marzo. Ministerio de Presidencia. Boletín Oficial del Estado, nº 311, pp 140488-140674. España

Real Decreto 314/2016, de 29 de julio, por el que se modifican el Real Decreto 140/2003, de 7 de febrero, por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano, el Real Decreto 1798/2010, de 30 de diciembre, por el que se regula la explotación y comercialización de aguas minerales naturales y aguas de manantial envasadas para consumo humano, y el Real Decreto 1799/2010, de 30 de diciembre, por el que se regula el proceso de elaboración y comercialización de aguas preparadas envasadas para el consumo humano. Ministerio de Presidencia. Boletín Oficial del Estado nº183, pp 53106-53126. España

Real Decreto 783/2001, de 6 de julio, por el que se aprueba el Reglamento sobre protección sanitaria contra radiaciones ionizantes. Boletín Oficial del Estado, n.º 178, pp. 27284--27393. España

Real Decreto 1836/1999, de 3 de diciembre, por el que se aprueba el Reglamento sobre instalaciones nucleares y radiactivas. Boletín Oficial del Estado, nº 313, pp. 46463-46482. España.

Rebour V., Billiotte J., Deveughele M., Jambon A., le Guen C. Molecular diffusion in water-saturated rocks: A new experimental method. *Journal of Contaminant Hydrology* 28 (1997) 71-93

Rodellas i Vila, V. (2008). Distribució de radionúclids naturals en una marjal càrstica del Mediterrani occidental: la marjal de Peníscola. Projecte Fí de Carrera. Universitat Autònoma de Barcelona. Facultat de Ciència.

Ródenas, C., Gómez, J., Soto, J., & Maraver, F. (2008). Natural radioactivity of spring water used as spas in Spain. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 277(3), 625-630.

Sainz, C., Rábago, D., Fuente, I., Celaya, S., & Quindós, L. S. (2016). Description of the behavior of an aquifer by using continuous radon monitoring in a thermal spa. *Science of the Total Environment*, 543, 460-466.

Santamarta, J. C., Hernández-Gutiérrez, L. E., Rodríguez-Martín, J., Díaz, R. M., Bascones, R. J. L., Moro, Á. M. G., & Cruz-Pérez, N. (2020). Radon measurements in water galleries in Tenerife, Canary Islands (Spain). *Air Quality, Atmosphere & Health*, 13(11), 1287-1292.

Siino, M., Scudero, S., Cannelli, V., Piersanti, A., & D'Alessandro, A. (2019). Multiple seasonality in soil radon time series. *Scientific reports*, 9(1), 1-13.

Singh, B., Singh, S., & Virk, H. S. (1993). Radon diffusion studies in air, gravel, sand, soil and water. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 22(1-4), 455-458.

Soto, J., Fernandez, P. L., Quindos, L. S., & Gomez-Arozamena, J. (1995). Radioactivity in Spanish spas. *Science of the total environment*, 162(2-3), 187-192.

Steck, D. J. (1992). Spatial and temporal indoor radon variations. *Health Physics*, 62(4), 351-355.

Steck, D. J. (2009). Annual average indoor radon variations over two decades. *Health Physics*, 96(1), 37-47.

Suárez, E., Fernández JA., Baeza, A., Moro, MC., Moreno del Pozo, J., Lanajo, J.M. Proyecto Marna. Mapa de radiación gamma natural. Colección de Informes Técnicos (2001). Referencia INT-04.02. Consejo de Seguridad Nuclear.

Torres-Durán M, Ruano-Ravina A, Parente-Lamelas I, et al. Lung cancer in never smokers. A case-control study in a radon prone area (Galicia, Spain). *Eur Respir J*. 2014, pii: erj00171-2014.

UNE-EN ISO 11665-1: Medición de la radiactividad en el ambiente. Aire: radón-222. Parte 1: Orígenes del radón y sus productos de desintegración de vida corta y métodos de medición asociados (2012).

UNE-EN ISO 11665-5: Medición de la radiactividad en el ambiente. Aire: radón-222. Parte 5: Método de medición en continuo para a actividad volumétrica (2012).

UNE-EN ISO 11665-6: Medición de la radiactividad en el ambiente. Aire: radón-222. Parte 6: Método de medición puntual para la actividad volumétrica (2012).

UNE-EN ISO 11665-7: Medición de la radiactividad en el ambiente. Aire: radón-222. Parte 7: Método de acumulación para estimar la tasa de exhalación en superficie (2012).

UNE-EN ISO/IEC 17025: Requisitos generales para la competencia de los laboratorios de ensayo y calibración (2017).

United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. (2000). UNSCEAR 2000 Report Vol I. Sources and effects of ionizing radiation. Annex D: Medical radiation exposures. UNSCEAR.

User Manual E-PERM. (2008). Rad Elec Inc.

User Manual Hidex 600 SL (2021). Hidex Oy.

User Manual Radon Scout Plus, (2017). Sarad Company

User Manual Rad7 (2000), DURRIDGE Co.

Vinson, D. S., Campbell, T. R., y Vengosh, A. (2008). Radon transfer from groundwater used in showers to indoor air. *Applied Geochemistry*, 23(9), 2676-2685.

Woith, H. (2015). Radon earthquake precursor: A short review. *The European Physical Journal Special Topics*, 224(4), 611-627.

Walczak, K., Olszewski, J., & Zmyslony, M. (2016). Estimate of radon exposure in geothermal spas in Poland. *International journal of occupational medicine and environmental health*, 29(1), 161.

Zeeb, H., & Shannoun, F. (2015). *Manual de la OMS Sobre el Radón en Interiores: Una perspectiva de salud Pública*.

Ziegler, J.F., Biersack, J.J., Littmark, U., *The stopping and range of ions in solids*. Pergamon press, New York (1985).

ANEXO A

ALGORITMOS IMPLEMENTADOS

A continuación, se presentan los algoritmos implementados en el Capítulo 8 para el desarrollo de los modelos dinámicos.

A.1. Determinación del coeficiente de velocidad de transferencia, k en condiciones de decaimiento.

```
%Definición de variables:
global Cw
global Ca
global S
global Va
global lambda
global tiempo
global Vw
global lenCa
global lenCw

%Inicialización del coef. k:
tiempo=1:lenCw;
k0=0.002;

%Definición funciones:

ftomin=@chi2;
kfinal=fminsearch(ftomin,k0);

tiempo=[];
Cw=[];
Ca= [];
S=XXX;
Va=XXX;
global alpha;
alpha=XXX;
lambda=XXX;
Vw=XXX;

lenCa = length(Ca);
lenCw = length(Cw);
```

Estudio del comportamiento del gas radón en los procesos de transferencia en agua y en aire

```
%Definición Ca estimada:
global estimada
global lenCw
estimada = zeros(1,lenCw);
estimada(1) = FunA(1,kfinal,Cw(1));

for t=2:lenCw-1
    estimada(t) = FunA(t,kfinal,estimada(t-1));
end

%Cálculo del residuo de Cw:
figure
ResiduosCw = zeros(1,lenCw-1);
for t=1:lenCw-1
    ResiduosCw(t)=Cw(t)-estimada(t);
end
DesvResCw=std(ResiduosCw);

%Calcular límites superior e inferior:
estimadam2s = zeros(1,lenCw-1);
estimadaM2s = zeros(1,lenCw-1);

for t=1:lenCw-1
    estimadam2s(t) = estimada(t)-2*DesvResCw;
    estimadaM2s(t) = estimada(t)+2*DesvResCw;
end

%Función que define la Cwestimada y la diferencia cuadrática
de ambas:
function [diff,Cwt] = FunDif(t,k,Cam1)
global Cw
Cwt = FunA(t,k,Cam1);
diff=(Cw(t+1)-Cwt)^2;
end

function f=FunA(t,k,Cam1)
global Cw
global Ca
global S
global Va
global lambda
global Vw
global alpha
global tiempo
```

```

%Función que calcula coeficiente k:
exparg=((S*k/Vw)+lambda);
T1=tiempo(t+1);
T0=tiempo(t);

Termino1=Cam1*exp((-exparg)*(T1-T0))
Termino2=(S*alpha*k/Vw)*
((Ca(t))*exp(exparg*T0)+(Ca(t+1))*exp(exparg*T1))/2);
Termino2=Termino2*exp(-exparg*T1);

f=Termino1+Termino2;
end

```

A.2. Determinación de la concentración de radón en aire C_a estimada a partir del coeficiente de velocidad de transferencia, k

```

%Definición de variables:
global Cw          Tiempo=[];
global Ca          Cw=[];
global S           Ca=[];
global Va          S=XXX;
global lambda      Va=XXX;
global tiempo      global alpha;
global Vw          alpha=XXX;
global lenCa       lambda=XXX;
global lenCw       Vw=XXX;
                  lenCa = length(Caexp);
                  lenCw = length(Cwajuste);

%Definición coef. k:
k=0.0014; %(Estático)
k=0.0024 %(agitación);

%Crear un array de ceros
lenCa = length(Caexp);
Ca=zeros(1,lenCa);
Ca(1)=Caexp(1);

```

Estudio del comportamiento del gas radón en los procesos de transferencia en agua y en aire

```
%Crear vector Cateo
for t=1:lenCa-1
exparg= ((S*k*alpha/Va)+lambda);
T1=Tiempo(t+1);
T0=Tiempo(t);

Termino1=Ca(t)*exp((-exparg)*(T1-T0));
Termino2=(S*k/Va)*(((Cwexponencial(t+1)*exp(-exparg*T1)+Cwex-
ponencial(t)*exp(-exparg*T0)))/2);
Termino2=Termino2*exp(-exparg*T1);
Ca(t+1)=Termino1+Termino2;
end

%Cálculo residuos:
ResiduosCa = zeros(1,lenCa-1);
for t=1:lenCa-1
    ResiduosCa(t)=Caexp(t)-Ca(t);
end
DesvResCa=std(ResiduosCa)

%Calcular límites superior e inferior de Caestimada
estimadam2s = zeros(1,lenCa);
estimadaM2s = zeros(1,lenCa);

for t=1:lenCa-1
    estimadam2s(t) = Ca(t)-2*DesvResCa;
    estimadaM2s(t) = Ca(t)+2*DesvResCa;
end
```

A.3. Determinación de la tasa de emanación, E, en condiciones de crecimiento de radón.

```

%Definición de variables:
global Cwajuste      Tiempo=[];
global Caexp         Cwajuste=[];
global S             Caexp= [];
global Va            S=XXX;
global lambda        Va=XXX;
global tiempo        global alpha;
global Vw            alpha=XXX;
global lenCa         lambda=XXX;
global lenCw         Vw=XXX;
                    lenCa = length(Caexp);
                    lenCw = length(Cwajuste);

%Definición coef. k:
k=0.0014; %(Estático)
k=0.0024 %(agitación);
%Inicialización E:      %Definición funciones:
E0=3000;                ftomin=@chi2;
                        kfinal=fminsearch(ftomin,E0);

% Se define la variable Ca estimada
global estimada
estimada = zeros(1,lenCw);
estimada(1) = FunA(1,Efinal,Cwajuste(1));

for t=2:lenCw-1

    estimada(t) = FunA(t,Efinal,estimada(t-1));
end

%Cálculo residuos:
ResiduosCw = zeros(1,lenCw-1);
for t=1:lenCw-1
    ResiduosCw(t)= Cwajuste(t)-estimada(t)
end

```

Estudio del comportamiento del gas radón en los procesos de transferencia en agua y en aire

```
%Cálculo de los límites
estimadam2s = zeros(1,lenCw-1);
estimadaM2s = zeros(1,lenCw-1);
for t=1:lenCw-1
    estimadam2s(t) = estimada(t)-2*DesvResCw;
    estimadaM2s(t) = estimada(t)+2*DesvResCw;
end
figure

%Función que define la Cwestimada y la diferencia cuadrática
de ambas:
function [diff,Cwt] = FunDif(t,E,Cam1)
global Cwajuste
Cwt = FunA(t,E,Cam1);
diff=(Cwajuste(t)-Cwt)^2;
end

%Función que calcula la tasa de emanación, E
function f=FunA(t,E,Cam1)
global S
global Va
global lambda
global Vw
global alpha
global tiempo
global k
global Caexp

exparg=((S*k/Vw)+lambda);
T1=tiempo(t+1);
T0=tiempo(t);
Termino1=Cam1*exp((-exparg)*(T1-T0));
Termino2=(S*alpha*k/Vw)*(Caexp(t)*exp(exparg*T0)+
Caexp(t+1)*exp(exparg*T1))/2;
Termino2=Termino2*exp(-exparg*T1);

Termino3=E/Vw*(1.-exp(-exparg*(T1-T0)))/exparg;
f=Termino1+Termino2+Termino3;
end
```

```

%Función que calcula y guarda error cuadrático
function f=chi2(E)
f = 0;
global Cwajuste
global lenCw
Cam1 = FunA(1,E,Cwajuste(1));

f = (Cam1 - Cwajuste(2))^2;
for t=2:lenCw-1

    [diff, Cam1] = FunDif(t,E,Cam1);
    f=f+diff;
end
end

```

A.4. Determinación de la concentración de radón en aire C'_a estimada en crecimiento, a partir de la tasa de emanación, E, y coeficiente de velocidad de transferencia, k

```

%Definición de variables:
global Cwajuste           Tiempo=[];
global Caexp             Cw=[];
global S                 Ca= [];
global Va                S=XXX;
global lambda            Va=XXX;
global tiempo            global alpha;
global Vw                alpha=XXX;
global lenCa             lambda=XXX;
global lenCw             Vw=XXX;
                        lenCa = length(Caexp);
                        lenCw = length(Cwajuste);

%Definición tasa E:
E=53.25;

%Crear un array de ceros y definir Ca:
lenCa = length(Caexp);
Ca=zeros(1,lenCa);
Ca(1)=Caexp(1);

```

Estudio del comportamiento del gas radón en los procesos de transferencia en agua y en aire

```
%Crear un vector Cateo que guarda los resultados
for t=1:lenCa-1
exparg=(S*k*alpha/Va)+lambda);
T1=Tiempo(t+1);
T0=Tiempo(t);

Termino1=Ca(t)*exp((-exparg)*(T1-T0));
Termino2=(S*k/Va)*((Cwajuste(t+1)*exp(-exparg*T1)+Cwajuste(t)*exp(-exparg*T0))/2);
Termino2=Termino2*exp(-exparg*T1);
Termino3=E/Vw*(1.-exp(-exparg*(T1-T0)))/exparg;

Ca(t+1)=Termino1+Termino2+Termino3;
end

%Cálculo residuos:
ResiduosCa = zeros(1,lenCa-1);
for t=1:lenCa-1
    ResiduosCa(t)=Caexp(t)-Ca(t);
end
DesvResCa=std(ResiduosCa)

%Calcular límites superior e inferior de Caestimada
estimadam2s = zeros(1,lenCa);
estimadaM2s = zeros(1,lenCa);

for t=1:lenCa-1
    estimadam2s(t) = Ca(t)-2*DesvResCa;
    estimadaM2s(t) = Ca(t)+2*DesvResCa;
end
```