



VNIVERSITAT E VALÈNCIA

PROGRAMA DE DOCTORADO EN FÍSICA-3126. R.D. 99/2011

**CONTRIBUCIÓN A LAS MEDIDAS DE GAS
RADÓN: METODOLOGÍA, APLICACIÓN Y
ESTIMACIÓN DE DOSIS**

TESIS DOCTORAL

Vanesa Delgado Belmar

DIRECTOR

José Díaz Medina

València, Noviembre 2020

José Díaz Medina, Catedrático de Física Atómica, Molecular y Nuclear y miembro del Instituto de Física Corpuscular de la Universidad de Valencia,

CERTIFICA:

Que la presente memoria “Contribución a las medidas de gas radón: metodología, aplicación y estimación de dosis” ha sido realizada bajo su dirección en los laboratorios del Instituto de Física Corpuscular, LARAM y del Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear por Dña. Vanesa Delgado Belmar, y constituye su Tesis para optar al grado de Doctor en Ciencias Físicas.

Y para que así conste, en cumplimiento de la legislación vigente, presenta ante la Facultad de Física de la Universidad de Valencia la referida Tesis, firmando el presente certificado en

Burjasot a 2 de noviembre de 2020

Fdo: José Díaz Medina

Índice general

I	INTRODUCCIÓN TEÓRICA	17
1.	El radón y sus descendientes como principal fuente de dosis	19
1.1.	Principios de radiactividad	19
1.1.1.	Procesos Radiactivos	20
1.1.2.	Medida de la radiactividad	24
1.1.3.	Isótopos radiactivos en la naturaleza	25
1.1.3.1.	Series radiactivas en la naturaleza	25
1.1.3.2.	Isótopos individuales en la naturaleza	27
1.1.3.3.	Isótopos cosmogénicos	28
1.1.4.	Radiactividad recibida por el ser humano	29
1.2.	El radón	31
1.2.1.	Propiedades físico químicas del radón	31
1.2.2.	Isótopos de radón	31
1.2.3.	Origen del radón en el aire	32
1.2.4.	Descendientes del radón en el aire	35
1.2.4.1.	Cálculo del factor de equilibrio	38
1.2.5.	Radón y descendientes en el agua	39
1.2.6.	Efectos del radón en la salud	41
1.2.7.	Marco legislativo	42
1.2.7.1.	Marco legislativo del radón y su descendencia en el aire	42
1.2.7.2.	Marco legislativo del radón y su descendencia en el agua	44
1.3.	Radón en lugares de trabajo	45

1.4. Radón en España	47
1.4.1. Radón en la Comunidad Valenciana	51
II MATERIAL Y MÉTODOS	53
2. Determinación de radón en aire	55
2.1. Tipo de detectores para la medida de radón en aire	55
2.1.1. Detectores pasivos	55
2.1.2. Detectores de medida en continuo	58
2.2. Exposición de los detectores	63
2.2.1. Exposición de canister de carbón activo	63
2.2.2. Exposición de detectores de trazas	64
2.2.3. Exposición de detectores electrónicos	64
2.3. Medida de los detectores	65
2.3.1. Canister de Carbón activo	65
2.3.2. Detectores de película	67
2.3.3. Detectores electrónicos	69
2.4. Comparación de técnicas de radón en aire	71
2.4.1. Comparación de técnicas de medidas de radón en aire a bajas concentraciones de radón	71
2.4.2. Comparación de técnicas de medidas de radón en aire generando altos niveles de radón	73
2.4.3. Comparación de técnicas de radón en aire en lugares con elevada humedad	76
2.5. Conclusiones	78
3. Determinación de radón en agua	79
3.1. Centelleo líquido	80
3.1.1. Principios de centelleo líquido	80
3.1.1.1. El líquido centelleador	82
3.1.1.2. Detector de centelleo líquido	82
3.1.2. Centelleo líquido de radón en agua	85
3.1.2.1. El espectro de ^{222}Rn en centelleo líquido	85

3.1.2.2.	Líquido de centelleo para la determinación de radón en agua	86
3.1.3.	Puesta a punto del método de centelleo líquido en el laboratorio	89
3.1.3.1.	Muestreo de agua para análisis de radón	89
3.1.3.2.	Preparación de las muestras y patrones para la medida	91
3.1.3.3.	Medida de las muestras	93
3.1.3.4.	Calibrado y Cálculo de la actividad	95
3.1.4.	Validación del método	99
3.2.	Espectrometría Gamma	101
3.2.1.	Principios de espectrometría gamma con detector semiconductor	101
3.2.2.	Espectrometría gamma del radón	103
3.2.2.1.	Calibrado en energía y eficiencia	105
3.2.2.2.	Muestreo	107
3.2.2.3.	Medida y cálculo de actividad en las muestras.	108
3.2.3.	Validación del método de espectrometría gamma	115
3.3.	Comparación de las técnicas LSC y Gamma para la determinación de radón agua	116
4.	Estimación de las dosis efectivas asociadas al gas radón	119
4.1.	Estimación de la dosis efectiva por inhalación de descendientes del radón	120
4.1.1.	Dosis debidas a la inhalación de radón.	120
4.1.2.	Limitación en actividad	123
4.2.	Estimación de la dosis debida a la ingestión de radón	126
III	RESULTADOS	129
5.	Concentraciones de gas radón en la Cueva de Sant Josep, Vall d'Uixò	131
5.1.	Introducción	131
5.1.1.	Situación y descripción general de la cueva	132

5.2. Metodología del estudio	135
5.2.1. Tipo y densidad de detectores utilizados	135
5.3. Resultados de actividad de radón	137
5.3.1. Influencia de las condiciones ambientales exteriores	138
5.3.1.1. Aumento de radón en la cueva en la transición primavera-verano	141
5.3.1.2. Descenso de radón en la cueva en la transición Otoño-Invierno	142
5.3.1.3. Variaciones diurnas de la concentración de radón	144
5.4. Resultados de factor de equilibrio	146
5.4.1. Influencia de las condiciones ambientales	146
5.5. Radón y otros radionúclidos en el agua de la cueva	149
5.6. Implicaciones dosimétricas para el personal	152
5.6.1. Radón efectivo	152
5.6.2. Estimación de dosis	152
5.7. Conclusiones	156
6. Concentraciones de gas radón en la Cueva del Rull, La Vall d'Ebò	161
6.1. Introducción	161
6.1.1. Situación y descripción general de la cueva	162
6.2. Metodología del estudio	164
6.2.1. Tipo y densidad de detectores utilizados	164
6.3. Resultados de actividad de radón	165
6.3.1. Influencia de las condiciones ambientales	165
6.3.2. Variaciones diurnas de la concentración de radón	168
6.4. Resultados de factor de equilibrio	170
6.5. Radón y otros radionúclidos en el agua de la Cueva	171
6.6. Implicaciones dosimétricas para el personal	173
6.6.1. Radón efectivo	173
6.6.2. Estimación de dosis	173
6.7. Conclusiones	177

7. Concentraciones de gas radón en instalaciones hidroeléctricas subterráneas	179
7.1. Introducción	179
7.1.1. Situación y descripción general de las centrales	179
7.2. Elección del plan de medidas	184
7.2.1. Homogeneidad de radón, puntos de muestreo y detectores que se utilizarán	184
7.2.1.1. Estudio preliminar en la central Villarino de Conso	184
7.2.1.2. Estudio preliminar en la central hidroeléctrica Aldeadávila I	186
7.2.1.3. Estudio preliminar en la central hidroeléctrica La Muela I	189
7.2.1.4. Conclusiones de los estudios preliminares	190
7.3. Actividades de radón en todas las centrales durante tres meses	192
7.4. Actividades de radón en todas las centrales durante un año completo	194
7.4.1. Variaciones estacionales de radón	196
7.5. Implicaciones dosimétricas para el personal	201
7.5.1. Radón efectivo	201
7.5.2. Estimación de las dosis	202
7.6. Conclusiones	205
8. Concentraciones de gas radón en aguas naturales de la Comunidad Valenciana	207
8.1. Introducción	207
8.2. Puntos de muestreo y metodología	208
8.3. Resultados de actividad de radón en las aguas	210
8.4. Implicaciones dosimétricas del radón en las aguas	214
8.5. Conclusiones	216
IV CONCLUSIONES PRINCIPALES	219
9. Conclusiones	221

Índice de figuras

1.1. Series radiactivas en la naturaleza.	26
1.2. Comportamiento del radón y descendencia en interiores.	38
1.3. Tipos de suelos en la península Iberica.	47
1.4. Mapa de radiación Gamma en España(MARNA2000).	48
1.5. Mapa de categorías de exposición potencial de radón (CSN, 2013).	49
1.6. Mapa potencial de radón en España, CSN2019.	50
2.1. Canister de Carbón activo en exposición y cerradas.	56
2.2. Detectores pasivos de tipo abierto y cerrado.	57
2.3. Detector electrónico Radon Scout Plus y forma del espectro.	59
2.4. Detector electrónico de radón Doseman.	61
2.5. Equipo de medida de progenie de radón Doseman-Pro y esquema de retención.	62
2.6. Espectrómetro gamma NaI utilizado para la medida de las canister.	65
2.7. Detector de película CR39	68
2.8. Detector de Película LR 115 y representación del tamaño de las trazas en la película.	68
2.9. Representación del registro de radón en función del tiempo-Software Radon Vision.	69
2.10. Histograma de los equipos Radon Scout y Doseman.	70
2.11. Estufa utilizada como cámara de radón con los detectores en su interior.	73
2.12. Colección de minerales utilizados para generar radón.	74

2.13. Evaluación de diferentes detectores en el laboratorio 1.	75
2.14. Evaluación de diferentes detectores en el laboratorio 2.	75
3.1. Diagrama de Jablonski. Transiciones electrónicas probables tras la excitación de un electrón.	80
3.2. Esquema de un equipo de centelleo líquido.	84
3.3. Espectro de radón en Centelleo líquido.	85
3.4. Espectro de patrones sin agente extintor.	88
3.5. Desplazamiento de los pico en el espectro con la extinción.	88
3.6. Diagrama de flujo del proceso de determinación de radón en agua por centelleo líquido.	90
3.7. Espectro LSC de un patrón de ^{222}Rn durante su crecimiento.	96
3.8. Curva de crecimiento de un patrón de ^{222}Rn	97
3.9. Calibrado de radón en Centelleo.	98
3.10. Espectro gamma de una muestra de agua medida 80000 s.	104
3.11. Espectro gamma del fondo del detector medido durante $1 \cdot 10^6$ s.	104
3.12. Calibrado en energía de una muestra.	105
3.13. Calibrado en eficiencia sobre la muestra.	107
3.14. Decaimiento de los fotopicos de Plomo y Bismuto.	114
5.1. Ubicación de las Cueva de San Josep.	132
5.2. Esquema del interior de la cueva de Sant Josep con los puntos de muestreo, EMB0, EMB1 y EMB2.	134
5.3. Perfil de concentración de radón en el interior de la cueva durante dos años consecutivos en el punto de muestreo EMB1.	137
5.4. Correlación de las variables ambientales externas con el perfil de concentración de radón en el interior de la cueva.	140
5.5. Subida de temperatura exterior y de la concentración de radón en el interior de la cueva en la transición primavera a verano.	141
5.6. Correlación entre las variables meteorológicas y el radón en el cambio de estación de primavera a verano.	142
5.7. Descenso de la temperatura exterior y de la concentración de radón en el interior de la cueva en la transición del otoño al invierno.	143

5.8. Correlación entre las condiciones meteorológicas y la concentración de radón en el cambio de estación de otoño a invierno. . .	143
5.9. Efecto de la lluvia en la concentración de radón en el interior de la cueva.	144
5.10. Variaciones diurnas de radón en verano e invierno.	145
5.11. Relación inversa entre la concentración de radón y su factor de equilibrio.	146
5.12. Correlación entre los factores de equilibrio y las variables meteorológicas.	148
5.13. Concentración de radón y radón efectivo calculado para el trabajador que más horas ha registrado en el interior de la cueva.	153
5.14. Dosis recibidas por un trabajador mes a mes durante el año 2014 ($DCF = 5 \text{ mSv/WLM}$).	155
6.1. Situación Cueva del Rull.	163
6.2. Imagen del interior de la Cueva del Rull.	163
6.3. Perfil anual de concentración de radón en la Cueva del Rull.	165
6.4. Perfil de radón y condiciones climatológicas en la Cueva del Rull.	166
6.5. Correlación de los parámetros meteorológicos exteriores con la concentración de radón.	167
6.6. Variaciones diurnas de la concentración de radón en la cueva del Rull.	169
6.7. Concentración de radón efectivo inhalado por las trabajadoras y concentración real de radón en la cueva del Rull.	174
6.8. Dosis recibidas por una trabajadora mes a mes ($DCF = 5 \text{ mSv/WLM}$).	176
7.1. Situación de las centrales estudiadas en el mapa de España.	180
7.2. Esquema de una central hidroeléctrica.	181
7.3. Plantas de una central hidroeléctrica.	183
7.4. Concentraciones de radón obtenidas estudio preliminar en la central hidroeléctrica de Villarino de Conso.	186
7.5. Concentraciones de radón obtenidas en el estudio preliminar en la central de Aldeadávila I.	188
7.6. Concentraciones de radón obtenidas en el estudio preliminar en la central de La Muela I.	190

7.7. Variaciones estacionales en las centrales del Duero.	199
7.8. Variaciones Estacionales en las centrales del Sil.	200
8.1. Zonas de muestreo de agua en fuentes naturales.	209
8.2. Histograma de frecuencias de concentración de radón en las aguas analizadas	212
8.3. Mapa de niveles de concentración de radón en aguas naturales de Castellón y Valencia	213

Índice de tablas

1.1. Dosis equivalentes totales recibidas por los humanos al año.	29
1.2. Propiedades físicas y químicas del radón.	32
1.3. Concentraciones de uranio en los diferentes tipos de suelo.	33
1.4. Propiedades del radón y sus descendientes de vida corta.	36
2.1. Comparación de las concentraciones de radón medidas con LR115 y CR39.	72
2.2. Comparación RScout y CR39 en condiciones de elevada humedad.	77
3.1. Variación del parámetro de extinción en los patrones de ^{226}Ra con el tiempo.	87
3.2. Diferencia de actividad entre muestras de agua tomadas en envases de plástico y cristal.	91
3.3. Diferencias entre la preparación de la muestra con jeringa y con pipeta de vidrio.	93
3.4. Eficiencias (%) en los diferentes intervalos de ventana.	94
3.5. Actividad mínima detectable (AMD) en función del tiempo de medida.	95
3.6. Parámetros de Validación en la determinación de ^{226}Rn mediante LSC.	100
3.7. Radiaciones utilizadas para la determinación de ^{222}Rn por espectrometría gamma.	103

3.8. Descendientes de radón en la cavidad del detector gamma en ausencia de muestra.	105
3.9. Actividades corregidas por decaimiento para cada fotopico. . .	111
3.10. AMD según los tiempos de medida (Bq/L).	112
3.11. Constantes de decaimiento de los fotopicos de ^{214}Bi y ^{214}Pb . .	114
3.12. Parámetros de Validación en la determinación de ^{222}Rn mediante espectrometría Gamma	115
3.13. Resultados de muestras medidas por centelleo líquido y espectrometría gamma.	116
4.1. Influencia de los parámetros físicos de las partículas en la dosis. .	122
4.2. Diferentes factores de conversión a dosis recomendados por el ICRP.	124
5.1. Concentración de radón y factor de equilibrio en invierno y verano. .	135
5.2. Homogeneidad de radón en el interior de la cueva	136
5.3. Concentración de radón mensual en los años 2013 y 2014 en el punto de muestreo EMB1.	138
5.4. Factores de equilibrio medidos en diferentes jornadas en el punto de muestreo EMB1.	147
5.5. Concentración de radón y otros radionúclidos en el agua del río que recorre la cueva.	150
5.6. Dosis estimadas para los trabajadores de la cueva teniendo en cuenta diferentes DCF, F, tiempo de permanencia.	154
5.7. Dosis estimadas un visitante teniendo en cuenta diferentes DCF. .	155
6.1. Factores de equilibrio en la Cueva del Rull.	170
6.2. Radón y otros radionúclidos en el agua de la cueva.	171
6.3. Dosis estimadas para las trabajadoras de la cueva teniendo en cuenta diferentes DCF, F y tiempo de permanencia.	175
6.4. Dosis estimadas para un turista de la cueva teniendo en cuenta diferentes DCF, F.	176
7.1. Concentración de gas radón en todas las centrales hidroeléctricas en 3 meses del año 2013.	193

7.2. Concentraciones de radón en todas las hidroeléctricas durante un año.	197
7.3. Concentraciones efectivas recibidas por los trabajadores en un año.	202
7.4. Dosis máximas y mínimas recibidas por los trabajadores de las instalaciones hidroeléctricas.	204
8.1. Concentraciones de radón en aguas de la Comunidad Valenciana.	211
8.2. Dosis efectivas debidas al radón en aguas.	215

INTRODUCCIÓN

GENERAL Y OBJETIVOS

El gas radón es un carcinógeno reconocido por la Organización Mundial de la Salud desde final de los años 80. Se estima que es la segunda causa de cáncer de pulmón por detrás del tabaco, y que solo en Estados Unidos, provoca de quince a veinte mil muertes anuales. Es, por tanto, un problema importante de salud pública, sin embargo, a día de hoy sigue siendo un gran desconocido para la población y solo unos pocos países han incluido planes nacionales para su control y la correspondiente minimización de sus riesgos.

En España ha sido legislado durante los últimos años pero, a pesar de ello, son muy pocas las medidas que se realizan.

El objetivo de la presente tesis es describir y comparar la diferente metodología para la medida de la concentración de radón tanto en aire como en agua y utilizarla para determinar las concentraciones a las que las personas están expuestas, así como calcular las dosis asociadas.

El capítulo 1 de este trabajo es una breve introducción teórica sobre las radiaciones ambientales, la importancia del gas radón y su progenie de vida corta ^{218}Po , ^{214}Bi , ^{214}Po . En él se trata de explicar el origen y la presencia de este gas en diferentes lugares. Así como su peligrosidad desde el punto de vista de la protección radiológica y la necesidad de su medida.

En los tres siguientes capítulos se describe la metodología usada.

En el capítulo 2 se describen los diferentes métodos utilizados para la medida de radón y su descendencia en aire, métodos pasivos y activos, y se realiza una comparación de estos en diferentes ambientes, naturales y creados arti-

ficialmente, para adecuar cada medida a sus necesidades y seleccionar así el método de medida adecuado a cada uno de los lugares de estudio.

En el capítulo 3 se presenta la diferente metodología utilizada para el análisis de radón en agua, espectrometría gamma y centelleo líquido, la puesta a punto de estos métodos adaptados a nuestro laboratorio (calibraciones, verificaciones, validaciones) y una comparativa de ambos métodos.

En el capítulo 4 se describe la metodología empleada para estimar las dosis por exposición al radón de las personas que se encuentran en lugares con mayor o menor presencia de este.

En los siguientes capítulos se presentan los resultados obtenidos al utilizar las metodologías optimizadas que se describen en los anteriores: En los capítulos 5 y 6 se presentan las actividades de radón y sus descendientes en el aire y la dependencia de estos con las condiciones meteorológicas en dos cuevas turísticas en dos puntos muy separados de la Comunidad Valenciana: Cueva de Sant Josep, en Vall d'Uixò, en la provincia de Castellón y Cueva del Rull, en La Vall d'Ebò en la provincia de Alicante. Además se realiza un estudio sobre la influencia del clima en la acumulación de radón en estas instalaciones. Y se estima la dosis que debido al radón reciben los trabajadores de estas cuevas.

En el capítulo 7 se presentan los resultados encontrados en instalaciones hidroeléctricas subterráneas situadas en diferentes zonas de península Ibérica, y las dosis estimadas para los trabajadores de estas.

En el capítulo 8 se presentan resultados de radón en aguas naturales de la Comunidad Valenciana, en las provincias de Castellón y Valencia, centrándose sobre todo en zonas donde, por la composición de sus suelos o sus características físicas, exista más probabilidad de su presencia.

Por último, el capítulo donde se recopilan todas las conclusiones principales de este trabajo es el capítulo 9.

Parte I

INTRODUCCIÓN
TEÓRICA

Capítulo 1

El radón y sus descendientes como principal fuente de dosis

1.1. Principios de radiactividad

La radiactividad nos rodea desde el origen de los tiempos, estamos expuestos en todo lo que hacemos, lo que comemos y respiramos de forma natural. Cuando se habla de radiactividad, la población, en general, suele pensar en aquella que proviene de la explotación de esta por parte del ser humano, en centrales nucleares o bombas, pero lo cierto es que la mayor parte de la radiación a la que estamos expuestos proviene de fuentes naturales, mientras que la producción antropogénica representa alrededor de un 20 % de esta, según la publicación de [UNS10], siendo un 19 % debida a usos médicos y un 0,3 % la que proviene de centrales nucleares, bombas o pruebas en la atmósfera.

La radiación natural representa un 80 % de la radiación total recibida. Un 13 % de esta proviene de la radiación cósmica, de la desintegración de los núcleos que se producen en el espacio, o la desintegración de partículas cargadas de origen cosmogénico, que se genera al entrar en contacto con la atmósfera. Por otro lado, un 16 % es causada por la radiación gamma externa recibida del

suelo, generada por la desintegración de los isótopos naturales de las cadenas del torio y el uranio. Un 10% de esta radiación recibida por el cuerpo humano es debida a la ingestión de alimentos que, ya sea de forma antropogénica o natural, contienen isótopos radiactivos. La inhalación del gas radón supone un 40% de la radiación total recibida, [UNS10], lo que la convierte en la mayor fuente de radiación recibida por el hombre.

1.1.1. Procesos Radiactivos

La radiactividad es el proceso por el cual los núcleos de algunos átomos no estables emiten radiación ionizante para convertirse en átomos más estables. Algunos de estos procesos conllevan que un átomo de un elemento se transforme en otro elemento y otros no, depende del tipo de radiación que se emita. Así hay átomos inestables que para alcanzar un estado más estable emiten radiación electromagnética, radiación gamma, y otros que emiten radiación corpuscular, como la radiación alfa (núcleo de ${}^4_2\text{He}$) o la radiación beta (positiva, con la emisión de un positrón; o negativa, con la emisión de un electrón).

Cualquier elemento químico está representado por su número atómico (Z) y su número másico (A). El número atómico representa el número de protones que posee el núcleo y el número másico la suma de los protones y de los neutrones que posee el núcleo.

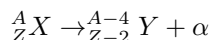
Un isótopo radiactivo de un elemento es aquel cuyo núcleo posee el mismo número atómico que el elemento estable, pero diferente número másico, es decir, difiere en el número de neutrones. Ejemplos de isótopos de un mismo elemento serían : deuterio, tritio, e hidrógeno estable. Dado que los protones son todos de carga positiva, cabría esperar que estos no pudiesen estar unidos en el núcleo de un átomo, ya que se repelerían, pero se mantienen unidos gracias a la fuerza nuclear fuerte. La inestabilidad del núcleo vendrá definida, por tanto, por la fuerza nuclear y la capacidad o incapacidad de esta de mantener unido al núcleo, que dependerá de la proporción de protones y neutrones que este tenga. No existen reglas que definan concretamente que núcleos son estables y cuales inestables. Sin embargo, se puede considerar que para bajos números atómicos ($Z < 60$) el átomo es estable si la relación entre sus neutrones y sus protones es aproximadamente uno, es decir, tiene el mismo número de neutrones que de protones. Sin embargo, conforme se aumenta el número de protones, el número

de neutrones es mayor a este, como una forma de compensar la mayor repulsión que exista entre los protones y mantenerlos unidos.

Como se ha dicho las radiaciones que emite un elemento radiactivo pueden ser alfa, beta (positiva y negativa) y electromagnética (Gamma). A continuación se describen brevemente cada una de ellas.

Tipos de radiaciones

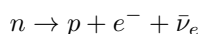
Radiación alfa La radiación alfa corresponde a la emisión de un núcleo de helio, (${}^4_2\text{He}$), con dos protones y dos neutrones, dando lugar a un nuevo núcleo de un elemento diferente, tal como se esquematiza.



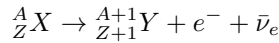
Las radiaciones alfa son de carga positiva, ya que corresponde a átomos de helio doblemente ionizado. Lo que conlleva que tras su emisión, los nuevos elementos formados puedan asociarse a partículas cargadas. Es la radiación más energética pero con un menor recorrido. Una sola hoja de papel es suficiente para detenerlas. Su ingestión o inhalación es peligrosa, ya que una vez en el cuerpo ionizan muy energéticamente los tejidos adyacentes, produciendo diferentes tipos de cáncer.

Radiación Beta La radiación beta consiste en la emisión de un electrón. La energía que desprende es inferior a la de las emisiones alfa, pero tiene mayor recorrido, ya que su masa es mucho menor que la de una partícula alfa. Es capaz de recorrer unos pocos centímetros en el aire y su penetración es de alrededor de 1 cm en la piel humana.

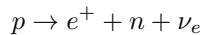
Existen dos tipos de desintegraciones beta: positiva y negativa. La emisión beta negativa, consiste en la emisión espontánea de un electrón del núcleo, tras la conversión de un neutrón en un protón, un electrón y un antineutrino.



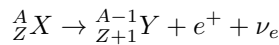
La emisión beta negativa da como resultado otro núcleo distinto con un protón más. Su representación esquemática sería:



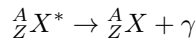
En la emisión beta positiva la partícula que se emite es un positrón, e^+ , que se define como la antipartícula del electrón, tiene la misma masa que un electrón pero carga positiva. Cuando en el núcleo hay exceso de protones con respecto a los neutrones, para compensar las fuerzas nucleares, un protón del núcleo se transforma en un positrón, un neutrón y un neutrino.



La emisión beta positiva da como resultado otro núcleo distinto con un protón menos, como se representa en la reacción:



Radiación Gamma La radiación gamma es una emisión de radiación electromagnética en forma de fotones muy energéticos, con la que el núcleo pasa de un estado energético superior a uno inferior. El núcleo no cambia su identidad, el átomo sigue siendo el mismo en un estado energético inferior.



Es la radiación que más recorrido puede hacer, debido a que es neutra, y es altamente penetrante, solo se frena con planchas de materiales muy densos como el plomo. Debido a lo cual, se considera la radiación más peligrosa a pesar de que su poder de ionización es inferior al de las radiaciones alfa o beta.

Ley de desintegración radiactiva La emisión radiactiva de cualquier núcleo es un proceso aleatorio, por lo que no se puede predecir cuándo un núcleo en concreto se va a desintegrar. Sin embargo en el año 1900 Rutherford sugirió que las emisiones radiactivas de una sustancia disminuían exponencialmente con el tiempo, creando así la “Ley de desintegración radiactiva” según la cual, en un determinado tiempo, el número de núcleos desintegrados es proporcional al número de núcleos que quedan, con una constante de desintegración, λ , característica de cada átomo.

$$-dN = \lambda N dt \quad (1.1)$$

Siendo N el número de núcleos, y t el tiempo.

La actividad radiactiva, A , se definió entonces como la velocidad de desintegración de los núcleos:

$$A = \frac{-dN}{dt} = \lambda N \quad (1.2)$$

La integración de la ecuación anterior nos proporciona el número de partículas que hay en cada momento y cuantas han desaparecido.

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.3)$$

Derivando esta ecuación se puede describir la actividad en función del tiempo como:

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad (1.4)$$

donde A_0 es la actividad inicial de la muestra radiactiva.

En el Sistema Internacional la unidad de medida es el Bequerelio (Bq), que equivalen a una desintegración por segundo ($1 \text{ Bq} = 1 \text{ desintegracion} \cdot \text{s}^{-1}$).

La constante de desintegración, λ , es característica de cada núcleo y representa la probabilidad de emisión por unidad de tiempo, luego si λ es alta la velocidad de desintegración será mayor, y si λ es baja, esta velocidad será más pequeña. La constante λ tiene unidades de tiempo inverso. Para que la idea de mayor o menor probabilidad de emisión sea más intuitiva se definió el período de semidesintegración, $T_{1/2}$, como el tiempo necesario para que el número de átomos radiactivos de un isótopo se reduzca a la mitad del inicial. A partir de la ecuación que define la ley de desintegración, la definición de $T_{1/2}$ establece la siguiente relación con la constante de desintegración:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (1.5)$$

1.1.2. Medida de la radiactividad

Existen diferentes magnitudes para medir la radiactividad, cuantificar la energía depositada en un medio material y cuantificar los efectos biológicos en tejidos. La actividad o actividad específica de una sustancia o material no representa el daño que podría ser causado por las radiaciones por lo que se introducen las magnitudes dosimétricas: dosis absorbida, dosis equivalente y dosis efectiva. A continuación se explican brevemente estos términos y cómo pueden ser estimados.

1) **Actividad:** es el número de desintegraciones radiactivas (Bq). Históricamente se han utilizado otras unidades, como el Curio (Ci) que equivale a $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq.

2) **Actividad específica:** es la actividad por unidad de masa, volumen o superficie. Se mide en Bq/g, Bq/L o Bq/m², respectivamente.

2) La **dosis absorbida**, que es la cantidad de energía depositada por unidad de masa por un radionúclido en un material. Su unidad en el S.I. es el Gray (Gy) que equivale a 1 J/kg.

3) La **dosis equivalente:** es la dosis absorbida ponderada en términos del daño producido por las diferentes radiaciones, alfa, beta o gamma. Las dosis equivalentes se calculan a partir de las dosis absorbidas por la radiación R , $D_{abs,R}$, multiplicadas por un factor de ponderación que depende del tipo de radiación, w_R , [ICR91]. Debido a los efectos más o menos ionizantes, estos factores de ponderación son mucho mayores para radiaciones alfa, que para radiaciones beta o gamma.

Su unidad de medida es el Sievert (Sv). Desde el punto de vista dimensional el Sv y el Gy tienen las mismas dimensiones físicas, J/kg, sin embargo se utiliza la unidad «Sv» para diferenciar que esta es una medida del «daño biológico» y no de energía depositada.

$$D_{eq} = w_R \cdot D_{abs,R} \quad (1.6)$$

En el caso de que existan radiaciones y energías con distintos valores de w_R , la dosis equivalente a un órgano o tejido, $D_{eq,T}$, será la suma ponderada de todas las dosis equivalentes recibidas por este.

$$D_{eq,T} = \sum w_R \cdot D_{abs,R,T} \quad (1.7)$$

4) La **dosis efectiva**, representa la dosis equivalente ponderada en términos del daño causado a los diferentes tejidos. Es la suma de todas las dosis equivalentes proporcionadas en los diferentes órganos o tejidos causadas por un tipo de radiación. Por lo que puede ser calculadas como:

$$D_{Ef} = \sum D_{eq,T} = \sum w_R \cdot w_T \cdot D_{abs,R,T} \quad (1.8)$$

Donde w_T es el factor de ponderación para el órgano. Los factores de ponderación para los diferentes órganos se encuentran publicados en [ICR91] y [ICR07]. Al igual que las dosis equivalentes su unidad de medida es el Sv.

En muchos casos, para facilitar el cálculo de las dosis efectivas, estas se calculan a través de un factor de conversión a dosis, DCF (Sv/Bq) (de sus siglas en inglés *Dose Conversion Factor*), que ha sido estipulado con modelos biocinéticos y/o epidemiológicos para cada radionúclido, y la actividad a la que los humanos son expuestos mediante vías de inhalación, ingestión o exposición directa.

$$D_{Ef} = A_{exp} \cdot DCF \quad (1.9)$$

En el apartado de conversión a dosis sobre el radón, §4.1.1, se explica con mayor profundidad este tipo de estimación de la dosis efectiva, haciendo referencia a este radionúclido y sus diferentes vías de exposición.

1.1.3. Isótopos radiactivos en la naturaleza

En la naturaleza existen isótopos radiactivos de diferente origen, los procedentes de fuera de la Tierra, llamados cosmogénicos, y los que se encuentran de forma natural en ella, que pueden dividirse en isótopos pertenecientes a series radiactivas e isótopos individuales.

1.1.3.1. Series radiactivas en la naturaleza

Una desintegración radiactiva se produce cuando el núcleo es inestable, pero el núcleo producido puede continuar siendo inestable, y producir otra

desintegración, del mismo o distinto tipo, hasta llegar un núcleo estable. Cada núcleo de esta cadena es denominado “padre” del siguiente, e “hijo” del anterior. A este tipo de radiaciones en cadena se les denomina series radiactivas. En la naturaleza existen actualmente tres series radiactivas naturales, la serie del ^{238}U , la del ^{232}Th y la del ^{235}U , esta última casi desaparecida debido a la poca abundancia de este isótopo en la naturaleza. Los esquemas de estas tres series radiactivas se representan en la figura 1.1.

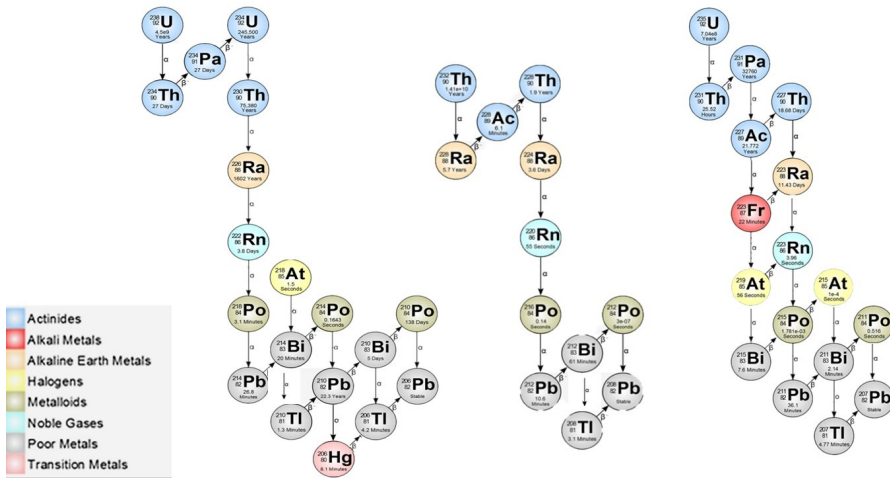


Figura 1.1: Series radiactivas en la naturaleza.

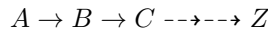
Los radionúclidos primeros de las series, o primordiales, tienen períodos de semidesintegración del orden de la edad de la Tierra, estimada actualmente en $4,5 \cdot 10^9$ años, por lo que, en general, se podría decir que llevan aquí desde el origen de esta. Sus sucesores, con tiempos de vida más cortos, podrían haber estado presentes en la formación de la Tierra o haberse generado después a partir de sus padres.

En cada una de las series hay radionúclidos que son de mayor importancia que otros, en función de las dosis, su elevada energía de desintegración o abundancia. Así, por ejemplo, en la serie de ^{238}U , uno de los radionúclidos más importantes es el propio ^{238}U y el ^{234}U , ya que su presencia en la Tierra es de las más elevadas y se encuentra repartido por toda la corteza terrestre. También es de gran importancia el ^{230}Th que aporta altas dosis al pulmón cuando

es inhalado debido a su período de semidesintegración y su alta energía. De la serie del ^{232}Th cabría destacar el ^{228}Ra , que aporta elevadas dosis vía ingestión o inhalación, al igual que el ^{228}Th . De la serie del ^{235}U podríamos destacar el ^{223}Ra , aunque esta serie es ya tan poco abundante en la naturaleza que estos isótopos no suponen apenas problemas para la salud.

En lo que respecta al radón, vemos que en las tres cadenas existen isótopos de este y en las tres el radón es de los radionúclidos de la cadena más importantes. Más adelante, en el apartado § 1.2.2 se hablará de ellos y de la importancia relativa de cada uno de estos tres isótopos de radón.

La presencia de cada uno de los isótopos de las cadenas depende de la cinética de estos isótopos, es decir, de los períodos de semidesintegración que tengan cada hijo y cada padre y la relación entre estas velocidades de desintegración.



Se distinguen así tres tipos de situaciones de «equilibrio» en la naturaleza:

a) Equilibrio secular: Si el $T_{1/2}$ del padre es mucho mayor que el $T_{1/2}$ del hijo se alcanzará un equilibrio secular. A medida que el isótopo padre disminuye su actividad, aumenta la actividad del hijo hasta que se alcanza este equilibrio en el que ambos isótopos poseen la misma actividad.

b) Equilibrio transitorio: Este tipo de equilibrio se da si el $T_{1/2}$ del padre es algo mayor que el del hijo pero no mucho más. En este caso mientras la actividad del padre disminuye, la actividad del hijo aumenta, pero a su vez este va decayendo, se alcanzará un punto en el que ambas actividades sean iguales, pero a partir de este punto el equilibrio dejará de existir.

c) No equilibrio: En esta situación no se llega a alcanzar el equilibrio, puesto que el $T_{1/2}$ del padre es menor que el $T_{1/2}$ del hijo, por lo que la actividad del hijo aumenta, mientras que el padre desaparece.

1.1.3.2. Isótopos individuales en la naturaleza

Existen 20 isótopos radiactivos naturales primordiales cuya desintegración forma un núcleo ya estable y no forman cadenas, los isótopos individuales. La mayor parte de ellos tienen períodos de semidesintegración muy largos y su abundancia es muy pequeña, por lo que no tienen una gran importancia desde

el punto de vista biológico (^{138}La , ^{142}Ce , ^{147}Sm). Los más importantes, debido a que son más abundantes, son el ^{40}K y el ^{87}Rb , ambos metales alcalinos de elevada reactividad química.

El potasio forma parte de la mayoría de los procesos biológicos. Existen tres isótopos naturales de potasio, dos estables, ^{39}K y ^{41}K , y uno radiactivo, el ^{40}K , sus proporciones naturales son 93,3 %, 6,7 % y 0,012 %, respectivamente. A pesar de que la abundancia relativa del ^{40}K es bastante baja respecto a los otros isótopos, la cantidad de ^{40}K es significativa debido a su relevancia biológica. El ^{40}K tiene un elevado período de semidesintegración, $T_{1/2} = 1,26 \cdot 10^9$ años, con una desintegración mayoritariamente beta (89 %) con la que alcanza el isótopo estable ^{40}Ca , y una desintegración gamma (10,7 %).

El rubidio es un metal alcalino muy similar químicamente al potasio, por lo que puede sustituirlo en algunas funciones del cuerpo, de ahí su importancia biológica. El rubidio posee dos isótopos naturales, el ^{85}Rb (72,2 %) estable y el ^{87}Rb (27,8 %) radiactivo. El ^{87}Rb se desintegra en ^{87}Sr con una emisión beta. Se estima que la radiación que supone este isótopo es alrededor de una cuarta parte de la que aporta el ^{40}K .

1.1.3.3. Isótopos cosmogénicos

Se denominan isótopos cosmogénicos todos aquellos que son creados por la radiación cósmica, directa o indirectamente.

La radiación cósmica primaria es la que proviene directamente del espacio, de los cuerpos celestes, del Sol o de las explosiones de supernovas. Estas radiaciones son en su mayoría protones, H^+ , (89 %), y en menor cantidad partículas alfa, α , (9 %), o partículas cargadas, C^+ , N^+ , O^+ (0,5 %). Cuando estas radiaciones entran en contacto con la atmósfera, el campo magnético terrestre interaccionan con ellas, formando nuevas partículas cargadas, que a su vez producen otras radiaciones, dando lugar a las denominadas radiaciones en cascada.

Los radionúclidos cosmogénicos se generan en las capas altas de la atmósfera y descienden a la corteza terrestre con la precipitación y/o deposición. La interacción de estas partículas con los átomos del aire, el agua, el oxígeno, nitrógeno o el argón forman los llamados radionúclidos cosmogénicos secundarios. Este proceso de creación de núcleos se denomina espalación y los isótopos formados son entre otros ^3H , ^7Be , ^{14}C , ^{22}Na , ^{33}P , ^{38}Cl ...

Entre todos los existentes los más importantes, por abundancia y por los efectos biológicos que pueden producir en el organismo, son el ^3H y el ^{14}C , ambos emisores beta cuya incorporación al organismo se produce vía ingestión.

1.1.4. Radiactividad recibida por el ser humano

Según los datos de la UNSCEAR 2017 [UNS18], las dosis equivalentes de la población mundial debidas a radiación artificial no superan 1 mSv al año, ya que calcula una media de 0,65 mSv, de los cuales 0,62 mSv son debidos a pruebas médicas. Las radiaciones de origen natural suponen un total de 2,4 mSv anuales. En la tabla 1.1 se presenta cómo contribuyen a la dosis equivalente total las radiaciones según su origen.

La ingesta de alimentos y bebidas supone 0,29 mSv, un 9,5 % del total. Esta dosis se puede considerar tanto de origen natural como de origen artificial, aunque pueden existir radionúclidos artificiales acumulados en alimentos como el ^{90}Sr , la mayoría es natural. De hecho, solo el ^{40}K supone 0,17 mSv de los 0,29 mSv totales.

Las radiaciones provenientes de los rayos cósmicos y del suelo aportan 0,39 mSv y 0,48 mSv a la dosis, respectivamente. Mientras que el gas radón contribuye a la dosis total con 1,3 mSv, lo que supone más del 40 % de la radiación total recibida.

Tabla 1.1: Dosis equivalentes totales recibidas por los humanos al año.

Fuentes Naturales de dosis	Fuentes Artificiales de dosis 0,65 mSv
Alimentos 0,29 mSv	Centrales nucleares 0,00002 mSv
Rayos cósmicos 0,39 mSv	Chernobyl 0,002 mSv
Suelo 0,48 mSv	Radiación residual de armas 0,005 mSv
Radón 1,3 mSv	Medicina nuclear 0,03 mSv
	Radiología 0,62 mSv
Total 2,4 mSv	Total 0,65 mSv

Datos obtenidos de UNSCEAR2017

La media de dosis recibida por el público general en España, sin contar a los trabajadores expuestos, está estimada en 3,7 mSv/año, en total entre

radiaciones naturales y artificiales. Los porcentajes de cada tipo de radiación contribuyen a la radiación total de forma muy similar a los estimados por la UNSCEAR, aunque se producen variaciones importantes dentro del todo el territorio español debido al tipo de suelo o la altura sobre el mar de cada lugar. Así, por ejemplo, las dosis recibidas por radiación gamma del suelo pueden variar de 0,48 mSv hasta 0,6 mSv al año en terrenos que sean más uraníferos. La diferencia más grande se observa en el caso del radón, que puede suponer desde 1,15 mSv al año, en terrenos con bajo contenido de radio en el suelo, hasta los 40 mSv, en zonas en las que este radionúclido está más presente ([CSN12b]).

1.2. El radón

Ya se ha hablado en apartados anteriores de que el radón es la mayor fuente de dosis radiactiva para la población en general y de que está presente en todas las cadenas de desintegración naturales en el suelo. En esta sección describiremos qué es y el porqué de esta gran aportación a la dosis media, de dónde procede y cómo está cada individuo, en mayor o en menor medida, expuesto a él.

1.2.1. Propiedades físico químicas del radón

El radón es un gas incoloro, inodoro e insípido que se mezcla con el aire, motivo por el que es considerado un peligro invisible que no podemos conocer sin medir. Sus propiedades físicas y químicas se resumen en la tabla 1.2.

Su número atómico es $Z = 86$ y su configuración electrónica $[Xe] 4f^{14}5d^{10}6s^26p^6$. Su principal característica es que a presión y temperatura ambiente es un gas, de los llamados gases nobles, que presentan muy baja reactividad, ya que tienen su capa de electrones de valencia completa, aunque es el que más reactividad posee de todos los gases nobles debido a su menor energía de ionización. Es un elemento muy pesado, el gas monoatómico más denso de la tabla periódica, lo que le confiere una gran polarizabilidad y por tanto momentos dipolares que le hacen ser soluble en disolventes polares y en agua.

1.2.2. Isótopos de radón

El radón tiene tres isótopos radiactivos naturales, cada uno de ellos perteneciente a cada serie radiactiva, con números atómicos, ^{222}Rn , ^{220}Rn y ^{219}Rn , como podemos ver en la figura 1.1.

El ^{222}Rn procede de la serie radiactiva del ^{238}U , de la desintegración alfa del ^{226}Ra . Su radiactividad se basa en la emisión de una partícula alfa para transformarse en un núcleo de ^{218}Po y su $T_{1/2}$ es de 3,823 días ($\lambda = 0,18 \text{ días}^{-1}$).

El ^{220}Rn procede de la desintegración del ^{224}Ra , en la cadena del ^{232}Th , de ahí que históricamente se le haya nombrado como torón. Al igual que el ^{222}Rn , se desintegra con una emisión de una partícula alfa para transformarse en un núcleo de ^{214}Po , lo que lo diferencia principalmente es su $T_{1/2}$ que es de 55.6

Tabla 1.2: Propiedades físicas y químicas del radón.

Símbolo	Rn
Número atómico	86
Isótopos	^{222}Rn , ^{220}Rn , ^{219}Rn
Aspecto	Incoloro
Estado a $T = 20^\circ\text{C}$	Gaseoso
Densidad	$9,73 \text{ kg/m}^3$
Configuración electrónica	$[\text{Xe}]4f^{14}5d^{10}6s^26p^6$
Punto de fusión	-71°C
Punto de Ebullición	$-61,7^\circ\text{C}$
Solubilidad en agua	$169, 230 \text{ y } 510 \text{ cm}^3 \cdot \text{Kg}^{-1}$ a $0^\circ, 20^\circ$ y 30°C
Solubilidad en disolventes orgánicos	Soluble. Coeficiente de partición en octanol $\log \text{Kow} = 1.51$.
Difusión en el aire	$10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$

Datos obtenidos: <https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/24857>)

segundos ($\lambda = 0,012 \text{ s}^{-1}$).

El ^{219}Rn procede de la desintegración alfa del ^{223}Ra en la cadena del ^{235}U , se le denomina comúnmente actinón aunque provenga del ^{223}Ra , ya que este tiene un $T_{1/2}$ corto y el progenitor con mayor $T_{1/2}$ anterior es el ^{227}Ac . Su $T_{1/2}$ es aún más bajo que el del torón, de 3,96 segundos ($\lambda = 0,17 \text{ s}^{-1}$).

Debido a la menor abundancia, en el caso del actinón, y a la alta velocidad de desintegración, en el caso del torón, los estudios normalmente se refieren al isótopo ^{222}Rn , excepto en algunos casos donde pueda ser de gran importancia la actividad del torón [ICR07].

1.2.3. Origen del radón en el aire

La geología del terreno es el factor más importante en cuanto a contenido, liberación y distribución del radón en el medio [App10]. La concentración de ^{238}U y/o de ^{226}Ra como descendiente de este y progenitor del ^{222}Rn es el mayor determinante de la cantidad de radón que puede liberar un suelo. El uranio existe en mayor o en menor medida en todos los tipos de rocas y en

los suelos que estas forman. Como se observa en la tabla 1.3 los suelos de tipo granito son los que mayor concentración de uranio tienen, seguidos de algunas arcillas. Los suelos más calcáreos o arenosos tienen mucho menos.

Tabla 1.3: Concentraciones de uranio en los diferentes tipos de suelo.

Tipos de suelo	Contenido de ^{238}U (ppm)
Basálticas	1,0
Granitos	5,0
Arcillas	3,7
Arenas y carbonatos	0,5

Datos obtenidos: Proyecto Marna CSN2000

Pero no solo el contenido de uranio determina el radón que emanará del suelo. En ocasiones se encuentran altas concentraciones de radón en lugares donde el contenido de uranio no es elevado y bajas en lugares con elevado contenido de uranio.

La exhalación que se produzca dependerá de otros muchos factores como:

- a) La disposición en la que se encuentre los radionúclidos en el grano de la roca y la densidad de la roca.

Cuando el ^{226}Ra se desintegra emitiendo una partícula alfa en una dirección, el átomo de ^{222}Rn formado sale disparado en la dirección contraria, si este se dirige hacia capas más externas de la roca será más fácil que emane al exterior, si por el contrario la dirección es hacia el interior del grano quedará absorbido en este y decaerá en su interior sin llegar a salir [Fle82]. Este proceso llamado retroceso o «kickback», es típico de las emisiones alfa de todos los radionúclidos en el interior de rocas y minerales, siendo el principal responsable de los desequilibrios que pueden existir entre unos y otros radionúclidos de la misma cadena de desintegración en el ambiente.

- b) La porosidad y densidad de la roca o la existencia de grietas.

Si la roca es muy densa, es decir, existe poco hueco y los granos están muy juntos entre sí, el átomo de radón formado y disparado en dirección contraria a

la radiación alfa puede ser embebido en un grano adyacente. Si por el contrario entre los granos existe espacio, el radón podrá quedarse en estos huecos.

Además, en un tipo de suelo o roca que sea más porosa o existan grietas, la emanación por difusión del radón hacia el exterior, una vez formado, será más sencilla que en rocas más compactas.

c) Las condiciones atmosféricas.

Una vez el átomo de radón formado sale del poro será transportado hacia el exterior por mecanismos de difusión molecular, desde donde exista mayor concentración hacia donde haya menor, normalmente regido por la velocidad de renovación del aire en un ambiente interior y/o mecanismos de convección, es decir, por diferencias de presión. Si la presión del interior de un edificio es inferior a la presión del suelo o material, se permitirá una mayor emanación del radón hacia el edificio y viceversa.

d) La humedad y el transporte de fluidos por la roca.

El paso de agua a través de las rocas puede producir diferentes efectos. Por un lado, pequeños aumentos de humedad en las rocas producen incrementos en la cantidad de radón exhalada de la roca. Sin embargo, para humedades mayores del 8 %, se ha observado que produce una disminución lineal de exhalación de radón, [Hos07], debido a que, al estar los huecos entre los granos ocupados por el agua, se impide la emanación de radón a estos, y por tanto, hacia el exterior de la roca [Fle83].

Por otro lado, si el agua fluye entre los poros de la roca, puede disolver el radón que haya, el cual permanece disuelto hasta que encuentre una nueva fase gaseosa, una turbulencia o una llegada del agua a una zona abierta donde se libere del agua al aire. Por lo que el agua actúa como transporte. Dependiendo del tipo de terreno y de la velocidad del flujo la distancia recorrida puede llegar a ser de hasta 5 km en roca caliza [App13]. Este es el principal motivo de que en ocasiones existan elevadas actividades de radón en aguas de origen subterráneo y de la liberación en casas e industrias a través de tuberías o grifos.

e) La presencia de fallas geológicas

Las fallas activas pueden actuar como conductoras del gas desde capas más profundas de la Tierra hacia capas más externas. De hecho la medida de ra-

dón, tanto en aire como en aguas subterráneas, se utiliza frecuentemente para detectar fallas o estudiar su actividad y predecir terremotos [Che18, Hau81, Pap19, Tar19].

En el exterior, cuando el radón emana del suelo se diluye rápidamente con la atmósfera, pero en edificios cerrados puede acumularse. Su acumulación dependerá de la tasa de ventilación. El patrón en viviendas parece ser siempre el mismo, con máximos en invierno y mínimos en verano, que se corresponden con el nivel de ventilación de casi todos los hogares, ya que en verano se suelen mantener abiertas las ventanas durante más tiempo, aunque existen algunas excepciones debidas principalmente a hábitos humanos, calefacción, aire acondicionado, presencia de sótanos o bodegas, etc. Sin embargo, en otro tipo de instalaciones, naturales o hechas por el hombre, el patrón de comportamiento puede ser muy diferente.

1.2.4. Descendientes del radón en el aire

Como ya se ha comentado, el radón es un isótopo gaseoso con un $T_{1/2}$ de 3,8 días, por lo que la mayoría del que es inhalado con la inspiración es posteriormente exhalado mediante la espiración sin que este se desintegre ni reaccione en el interior de los pulmones afectando sus tejidos. Sin embargo, sus descendientes de vida corta que permanecen en la atmósfera son sólidos, lo que conlleva que al ser inhalados puedan quedar retenidos en los tejidos pulmonares, donde se desintegran produciendo daños en los tejidos adyacentes.

Los principales descendientes de radón, y en los que reside la mayor peligrosidad son los emisores alfa con un $T_{1/2}$ corto, ^{218}Po (3,10 min) y ^{214}Po ($1,6 \cdot 10^{-4}$ s). La emisión alfa del ^{214}Po produce ^{210}Po , que tiene un período de semidesintegración mucho más largo, de 138 días, por lo que su acumulación en aguas en ciertos sistemas puede ser debida a la presencia inicial de radón, es decir, el radón puede actuar como emisario de este desde el interior de la Tierra hasta ponerlo en contacto con el ser humano.

En la tabla 1.4 se representan las propiedades del radón y sus descendientes, sus emisiones y energías, así como su estado en condiciones ambientales normales.

Tabla 1.4: Propiedades del radón y sus descendientes de vida corta.

Radionúcleo	$T_{1/2}$	Tipo de desintegración	Energía (MeV)	Probabilidad (%)	Estado TPN
^{222}Rn	3,824 d	α	5,590	100	Gas
^{218}Po	3,10 min	α	6,115	100	Sólido
^{214}Pb	26,8 min	β	1,02	6	Sólido
			0,70	42	
			0,65	48	
		γ	0,786	1,1	
			0,352	35,6	
			0,295	18,7	
^{214}Bi	19,7 min	β	3,27	18	Sólido
			1,54	18	
			1,55	18	
		γ	0,61	46	
			1,77	16	
			1,12	15	
^{214}Po	$1,64 \times 10^{-4}$ s	α	7,69	100	Sólido
		γ	0,799	0,01	
^{210}Pb	22,2 a	α	3,79	$2,1 \times 10^{-6}$	Sólido
		γ	0,04		
^{210}Bi	5,012 d	β	1,16	100	Sólido
		γ	0,266		
		γ	0,305		
^{210}Po	138,38 d	α	5,304	99,99	Sólido
		γ	0,803	0,001	Sólido
^{206}Pb	ESTABLE				Sólido

Datos obtenidos: Radionucleides. DAMRI. y <https://pubchem.ncbi.nlm>.

Cuando el radón emana del suelo no va acompañado de descendientes ya que son metales pesados sólidos, pero, una vez en el aire, decae en ^{218}Po , que al contrario que su progenitor, puede ser un ión cargado positivamente que tiene tendencia a depositarse en paredes o suelos «Plateau» y a formar clusters y agregados con moléculas de vapor de agua. Estos agregados tienden a unirse a partículas en suspensión o aerosoles que existan en la atmósfera creando partículas más pesadas que se depositan en suelos y paredes en tiempos inferiores a un minuto. A la fracción libre o en forma de agregados se le denomina fracción no adherida, en inglés «unattached», y a la fracción que se ha unido a aerosoles o partículas más grandes se le denomina fracción adherida, o «attached».

De cualquiera de las dos formas, adherida o libre, el ^{218}Po se desintegra en ^{214}Pb . Si el nuevo ion de ^{214}Pb proviene de la fracción adherida, podrá continuar siendo un cluster o por el contrario, dependiendo del tamaño de la partícula, desprenderse quedando como fracción no adherida. De la misma forma, si el nuevo ^{214}Pb formado proviene de la fracción libre, será libre o podrá formar agregados o unirse a partículas para formar clusters al igual que su progenitor. El ^{214}Pb , decaerá en ^{214}Bi , que actúa de forma similar a sus progenitores, y decae a su vez en ^{214}Po . La cantidad de descendientes del radón en el aire dependerá de las condiciones ambientales, de la humedad, y del número, tamaño o tipo de partículas que existan en suspensión. En la figura 1.2 se resume esquemáticamente este comportamiento para facilitar su comprensión.

La cantidad de radón que pasa de radón a descendientes y permanece en el aire se contabiliza a partir de su factor de equilibrio F , el cual depende de la velocidad de desintegración de radón y descendientes, así como de su comportamiento en el aire, que a su vez dependerá de las condiciones ambientales del lugar.

El factor de equilibrio sería la unidad si no existieran ninguno de los efectos de formación de clusters y deposición, o si estos no se eliminaran durante su formación por la ventilación o deposición. Por este motivo el factor de equilibrio es muy variable y dependiente del ambiente, de la humedad, de la relación aire/superficie de deposición, de la cantidad y el tamaño de las partículas que haya en el ambiente, etc. La situación común es encontrar un «no equilibrio» entre el radón y sus descendientes.

Normalmente se suelen tomar factores de equilibrio a los que se ha llegado por consenso muy variables. Por ejemplo, para interiores $F = 0,4$ y para exteriores $F = 0,6$ [UNS00].

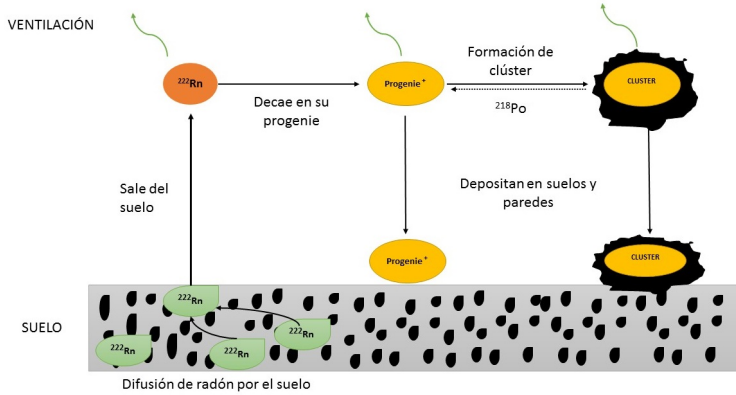


Figura 1.2: Comportamiento del radón y descendencia en interiores.

1.2.4.1. Cálculo del factor de equilibrio

En un estado de equilibrio perfecto, donde $F = 1$, la energía alfa total que se emite por cada átomo de radón y su correspondiente progenie, denominada PAEC (Potential Alpha Energy Concentration), se puede describir matemáticamente como:

$$PAEC = \sum_{i=1}^4 C_i \frac{E_{\alpha i}}{\lambda_i} \quad (1.10)$$

donde,

$E_{\alpha i}$, es la energía alfa de cada isótopo de progenie.

C_i , es la concentración de actividad cada isótopo de la progenie .

λ_i , la constante de desintegración de cada isótopo de la progenie.

Pero, conforme a lo explicado en el apartado anterior, el equilibrio real no es perfecto y las concentraciones de la progenie, C_i , no son iguales a las del radón. Se define entonces una concentración equivalente en equilibrio, EEC, como:

$$PAEC = EEC \sum_{i=1}^4 \frac{E_{\alpha i}}{\lambda_i} \quad (1.11)$$

donde EEC (Equilibrium Equivalent Concentration), es la concentración de una mezcla de hijos de radón de vida corta en estado de equilibrio equivalente. Teniendo en cuenta las energías de cada isótopo y sus correspondientes tiempos de desintegración puede escribirse como:

$$EEC = 0,105 \cdot C_1 + 0,515 \cdot C_2 + 0,380 \cdot C_3 \quad (1.12)$$

donde C1, C2 y C3 representan las concentraciones por unidad de volumen de ^{218}Po , ^{214}Pb y ^{214}Bi , respectivamente.

Podremos, por tanto, calcular el factor de equilibrio, F, como:

$$F = \frac{EEC}{C_{222Rn}} \quad (1.13)$$

Por tanto, para calcular el factor de equilibrio basta con medir la concentración de progenie, o la ECC, y la concentración de radón que hay en el aire, ya que este factor será el cociente entre ambos.

1.2.5. Radón y descendientes en el agua

El contenido de radón en el agua depende, tanto de la naturaleza geológica del terreno explicadas en el apartado § 1.2.3 sobre el origen del radón en el aire y su capacidad de emanación de la roca, como de las propiedades físicas y químicas del agua.

Las aguas pueden fluir y pasar por diferentes materiales disolviendo radón y otros radionúclidos, como uranios (^{238}U y ^{234}U) o ^{226}Ra , sin embargo, la concentración de estos en el agua no siempre es proporcional al contenido que exista en el suelo, debido a que la capacidad de disolución depende fuertemente de las condiciones químicas del agua como temperatura, pH, contenido orgánico o conductividad, o físicas como la velocidad a la que atraviese los materiales y el tiempo que tarde en salir al exterior, condiciones que a su vez dependen de las condiciones ambientales.

El contenido de radón en del agua puede ser proporcional al contenido de

sus progenitores ^{226}Ra en el terreno y/o en el propio agua, aunque varios ordenes de magnitud mayor, [Fon15, Job17], por lo que normalmente se encuentran mayores concentraciones en terrenos graníticos. Sin embargo, también se pueden encontrar aguas con altas concentraciones en lugares donde por su litología no se pueda prever que proceden de fuentes profundas que emanan al exterior por fracturas o fallas.

El contenido de radón en aguas en «abierto» como ríos o pantanos no suele ser elevado, ya que en contacto con la atmósfera el radón que hubiera en el agua se transfiere al aire. No obstante, si puede haber una gran concentración de radón en aguas de origen subterráneo.

Los descendientes de vida corta del radón en el agua no suponen un gran problema para la salud ya que, debido a sus cortos $T_{1/2}$, no suele haber una gran concentración de estos en el agua. Los que hay pueden ser consecuencia de la desintegración del radón en el propio agua, la deposición tras la desintegración del radón atmosférico y/o la presencia de radionúclidos de la cadena anteriores a este. Teniendo en cuenta que estos radionúclidos pueden ser de origen tanto natural como antropogénico, el contenido no dependerá solamente del terreno cercano y del radón que en él se produzca.

La mayoría de las aguas consumidas, tanto en España como en otros países, son extraídas de manantiales subterráneos o pozos, tanto las aguas de red como las aguas comerciales, que son las que pueden contener una mayor concentración de radón.

El mayor problema que presenta el radón en el agua no es su ingestión, sino su liberación a la atmósfera, ya que, debido a su tiempo de semidesintegración y a su estado gaseoso, es difícil que se ingiera una alta cantidad de radón con el agua. Tanto es así, que el 90% de la dosis atribuida al radón en el agua proviene de la inhalación de este tras liberarse en el interior de los edificios, y no de su ingestión [UNS10]. Por este motivo se considera necesario conocer el contenido de radón en el agua especialmente para determinar qué cantidad podría liberarse a la atmósfera en hogares e industrias donde se utilicen este tipo de aguas. Se ha estimado, en hogares, que el problema se agrava cuando la cantidad de radón en agua es superior a 1000 Bq/m^3 , que dependiendo de las condiciones, podrían liberar a la atmósfera al tirar de la cisterna o darse una ducha, aproximadamente unos 100 Bq/m^3 [WHO09], [NAS99]. Por supuesto,

en industrias, donde el volumen de agua utilizada es mucho mayor al de un hogar, la concentración de radón a considerar en el agua sería menor.

1.2.6. Efectos del radón en la salud

Cuando respiramos, el aire que entra en la inhalación cargado de radón y descendientes sólidos de $T_{1/2}$ corto hace que estos se depositen en los tejidos del sistema respiratorio, donde emiten radiación alfa a las zonas adyacentes, pudiendo dañar el DNA celular. Estas células irradiadas sufren mutaciones genéticas que pueden llevar a la célula a la apoptosis, o muerte celular, o reproducirse produciendo cáncer. El daño biológico que el radón, o cualquier otro radionúclido, pueda producir, se mide a través de la dosis.

Estos daños, generalmente asociados a procesos cancerígenos, son considerados efectos estocásticos y la probabilidad de que ocurran se calcula actualmente a partir de un modelo lineal sin umbral, es decir, la probabilidad del daño aumenta al aumentar la exposición de forma lineal. Además, se asume que no existe un nivel mínimo por debajo del cual la probabilidad de daño no exista. Dicho de otro modo, el daño puede producirse a partir de una sola partícula alfa, por lo que el riesgo existe aún a bajas concentraciones, aumentando en un 16 % con cada incremento de 100 Bq/m³ [WHO09].

Según la Organización Mundial de la Salud, OMS, el gas radón y su progenie de vida corta son los principales causantes de cáncer de pulmón, por detrás del tabaco. Se estima que en Europa el 9 % de las muertes por cáncer de pulmón se deben a la exposición a este gas [Dar05].

Pero, aunque es el efecto del radón más conocido, no solo se le asocia con el cáncer de pulmón, sino que existen numerosas publicaciones que lo relacionan con otros tipos de cáncer, como cáncer de estómago o leucemia por ingesta directa de radón en agua, [BL16, RR17]. También se vincula con otros tipos de enfermedades, ya sea como causante directo o exacerbante, como por ejemplo la hipertensión, la diabetes [Leh17], la esclerosis múltiple [Neu11] o el alzheimer, ya que los productos de desintegración del radón entran en el torrente sanguíneo que puede conducir a estos junto a sus derivados, todos ellos metales pesados, hasta el cerebro donde se depositan causando daños inmunológicos en el sistema nervioso central [Mom06].

1.2.7. Marco legislativo

Diferentes normativas regulan las cantidades máximas de la radiactividad a las que el ser humano está expuesto por medio de niveles de referencia o de niveles de acción, a partir de los cuales es necesario tomar medidas o limitaciones de dosis para proteger a la población.

1.2.7.1. Marco legislativo del radón y su descendencia en el aire

Desde los años 70 el ICRP (International Commission on Radiological Protection), que es el organismo que establece las bases científicas sobre protección radiológica, habla de la peligrosidad del radón y su descendencia en el aire. Las primeras recomendaciones sobre la protección de los trabajadores frente a radionúclidos naturales ya se dieron en los años 1977 y 1986 por parte del ICRP en sus publicaciones «Radiation Protection in Uranium and Other Mines» y «Radiation Protection of Workers in Mines» [ICR77, ICR86], en los que se referían a la protección de los trabajadores de minas de uranio o cualquier otro tipo de minas, ya que fueron los estudios epidemiológicos en este colectivo de trabajadores los que alertaron a las organizaciones sanitarias y científicas del peligro potencial que representaba la exposición a estas radiaciones.

En 1984 se habla por primera vez de la protección del público en general. En la publicación 39 del ICRP [ICR84], se señalaba al radón como fuente de exposición natural, y se establecían por primera vez unos niveles de acción de 200 Bq/m^3 en edificios ya construidos y 100 Bq/m^3 para construcciones futuras, a partir de los cuales habría que tomar medidas de protección o reducción.

En el año 1990 se publica la ICRP60 [ICR91], en la que se sigue considerando el radón, además de añadir otras fuentes naturales de radiación natural, y se mantienen los niveles de acción publicados en la ICRP 39 [ICR84]. Como novedad, en esta publicación se diferencian dos situaciones de exposición, trabajadores y miembros del público.

Son organismos internacionales como la Unión Europea (UE), o la Organización Mundial de la Salud (OMS), los que establecen los principios generales de cumplimiento en cuanto a protección de los trabajadores que deben regular en los diferentes países. En el año 1989 aparece la primera recomendación de la Unión Europea, Directiva Europea del 21 de diciembre de 1988 relativa a la

aproximación de las disposiciones legales, reglamentarias y administrativas de los Estados miembros sobre los productos de construcción [CE189], en la que se habla de la presencia de partículas, gases peligrosos o emisión de radiaciones frente a la cual los países estados miembro deben establecer un control. En el año 1992 se recoge por primera vez en la legislación española, con la transposición de esta Directiva al R.D. 1630/1992, [RD193] relativa a la circulación de productos de construcción, y que nombra al radón de forma indirecta, al igual que lo hacía la directiva europea, como gases tóxicos o emisión de radiaciones peligrosas sin límites de acción ni recomendaciones.

Es en 1993 cuando el ICRP emite su publicación 65, [ICR93], en la que se habla directamente de protección frente al radón, «Protection against ^{222}Rn at home and at work», donde además de establecerse valores para viviendas y para trabajadores de minas, se incluyen otros puestos de trabajo como balnearios o cuevas. También se proponen unos nuevos factores de conversión a dosis inferiores a los anteriores, cambiando así los niveles de acción por otros mayores, en viviendas entre 200 y 600 Bq/m^3 , que según esta publicación equivaldrían a unos 3 – 9 $\text{mSv}/\text{año}$, y en lugares de trabajo entre los 500 y los 1500 Bq/m^3 , cuya equivalencia en dosis varía de los 7,5 a los 22,5 $\text{mSv}/\text{año}$.

En 1996 la Directiva Europea 29, [CE296], establece «Normas básicas relativas a la protección de los trabajadores y de la población en general contra los riesgos que resultan de las radiaciones ionizantes», incluyendo en actividades laborales expuestas al radón de forma natural lugares subterráneos: aparcamientos, minas, cuevas turísticas, metro, etc. o lugares en los que se exploten aguas subterráneas, potabilizadoras de agua o balnearios, además de los lugares de trabajo, subterráneos o no, que se encuentren en zonas de alto potencial de riesgo. Esta directiva que se transpone en España como RD 783/2001, [RD701]. En este Real Decreto se obligaba a la autoridad competente a requerir a los titulares de las actividades laborales en las que existan fuentes naturales de radiación la realización de los estudios necesarios para conocer las concentraciones de radón en los puestos de trabajo. Como la autoridad competente era muy variada y no se especificaba quién debía requerir a los titulares los estudios de actividades de radón, ni en su mayoría tenían competencia en Protección Sanitaria frente a radiaciones ionizantes, en el año 2010 el nuevo Real Decreto modifica al anterior y obliga directamente a los titulares de las instalaciones a

realizar los estudios y presentarlos a la autoridad competente en su comunidad autónoma [RD110].

Los niveles de acción se establecen en la Instrucción del Consejo de Seguridad Nuclear IS-33, [CSN12a], «Criterios radiológicos para la protección frente a la exposición a la radiación natural» de 21 de Diciembre de 2011, publicado en el BOE el 26 de Enero de 2012, establece que:

- Para concentraciones inferiores a 600 Bq/m^3 , no es necesario control
- Para concentraciones con entre 600 y 1000 Bq/m^3 , se debe aplicar un nivel bajo de control.
- Para concentraciones superiores a 1000 Bq/m^3 , se debe aplicar un nivel alto de control.

Una nueva directiva europea 59/2013 EURATOM, [CE514], ha rebajado los niveles de acción a la mitad en los últimos años, requiriendo así tomar medidas de remedio a concentraciones de actividad de radón superiores a 300 Bq/m^3 . Además de requerir la implantación de un plan nacional de radón en todos los estados miembros. A día de hoy esta directiva aún no se ha transpuesto a legislación Española y no existe ningún plan nacional de protección frente al radón.

1.2.7.2. Marco legislativo del radón y su descendencia en el agua

El agua es considerada apta para el consumo humano si la actividad alfa total de esta es inferior a $0,1 \text{ Bq/L}$. Está estimado que la ingesta de agua supone un 10% de la actividad alfa total que recibe el cuerpo humano al año, si esta cantidad se supera se superaría la dosis de 1 mSv/año recomendado para la población en general. Pero en la legislación de referencia, tanto europea [CE296], como su transposición a la española por el Real Decreto RD140/2003 [RD1], no se tiene en cuenta en esta actividad alfa total la contribución por el radón.

La Directiva Europea, EURATOM 51/2013, [CE513], incluye el radón como parámetro a controlar en las aguas de consumo, estableciendo un nivel a partir del cual actuar de entre 100 Bq/L y 1000 Bq/L como valores que deben adoptar los países en sus transposiciones. En España esta directiva se transpone por el RD 314/2016 [RD316], en la que se adopta el nivel de acción de 500 Bq/L .

1.3. Acumulación de radón en lugares de trabajo: Industrias NORM

Cuando el radón emana del suelo en el exterior, se diluye rápidamente con la atmósfera, por lo que la concentración de radón en exteriores es lo suficientemente baja como para no suponer un riesgo para la salud. Sin embargo, se puede acumular en su interior. La acumulación del radón dependerá tanto de la cantidad que es capaz de emanar como del tipo de construcción o de los hábitos de ventilación.

El control de la radiactividad que es recibida por los trabajadores de industrias en las que se trata con materias primas radiactivas, como centrales nucleares o usos médicos, es un hecho firmemente implantado. Sin embargo, se tiende a olvidar en las radiaciones debidas a la radiación natural. Las industrias NORM, de su nombre en inglés Naturally Occurring Radioactive Material, Material Radioactivo de Origen Natural, son aquellas industrias «no nucleares» en las que se utilizan materias primas o generan residuos enriquecidos en radionúclidos naturales, de la serie del uranio y el torio. En estas industrias se incluyen grandes fábricas de materiales de construcción o industrias de fosfatos, ya que para la extracción utilizan rocas y minerales como materia prima y pueden preconcentrar en su extracción u obtener como subproductos radionúclidos de origen natural. También en industrias como la extracción de gas o petróleo que generan residuos contaminados con estos radionúclidos. Sin embargo, existen otros tipos de instalaciones consideradas NORM, que comprenden aquellas en las que, por su construcción o actividad, los trabajadores pueden estar expuestos al gas radón, aunque no se utilice o genere ningún producto radiactivo.

Estas industrias, según se recoge en la instrucción IS-33 del Consejo de Seguridad Nuclear [CSN12a], son:

1. *Cuevas, galerías y minas distintas de las del uranio.*
2. *Establecimientos termales.*
3. *Instalaciones donde se almacenen y traten aguas de origen subterráneo.*
4. *Lugares de trabajo subterráneos, o*
5. *Lugares de trabajo no subterráneos en áreas identificadas por sus valores elevados de radón.*

Aunque también se debe estudiar el radón en el resto de industrias NORM,

ya que se producen subproductos de radio que suponen la presencia de radón. En la instrucción se recogen los siguientes tipos de industrias:

6. *Extracción de tierras raras.*
7. *Producción y utilización del torio y sus compuestos.*
7. *Producción de niobio y ferro-niobio.*
8. *Producción de gas y petróleo.*
9. *Producción de cemento, mantenimiento de hornos de «clinker».*
10. *Fabricación de pigmentos de dióxido de titanio.*
11. *Industria del fosfato (producción de ácido fosfórico y de fertilizantes fosfatados).*
12. *Industria del zirconio.*
13. *Producción de estaño, cobre, aluminio, hierro, acero, cinc y plomo.*
14. *Centrales térmicas de carbón*

A pesar de que esta normativa está vigente en España son pocas las industrias y lugares que a día de hoy se han interesado por las concentraciones de radón a las que están expuestos los trabajadores, siendo la mayoría de ellos cuevas turísticas y balnearios. En la bibliografía pueden encontrarse, además de numerosas cuevas [Lar05, AG15, PM99, Due11, Dum15, Fue15], algunos estudios en balnearios a lo largo de toda la península [Sot95], varias publicaciones con estudios realizados diversos sectores en Extremadura [Sán12] y Cataluña [Fon08] . Una reciente publicación sobre un estudio piloto realizado en diferentes lugares de trabajo en 6 regiones de nuestro país (Galicia, Castilla León, Comunidad de Madrid, Castilla La Mancha , Cataluña y Cantabria) revela que, además de haber sido complicado encontrar voluntarios para realizar las medidas, la exposición al radón podría ser un problema de salud relevante en los lugares de trabajo en España [RR19].

1.4. Radón en España

Como ya se ha comentado, dependiendo del tipo de terreno, las cantidades de uranio y/o radio en este son diferentes. En el mapa litológico de la península ibérica podemos diferenciar 4 tipos de suelos principales, figura 1.3.

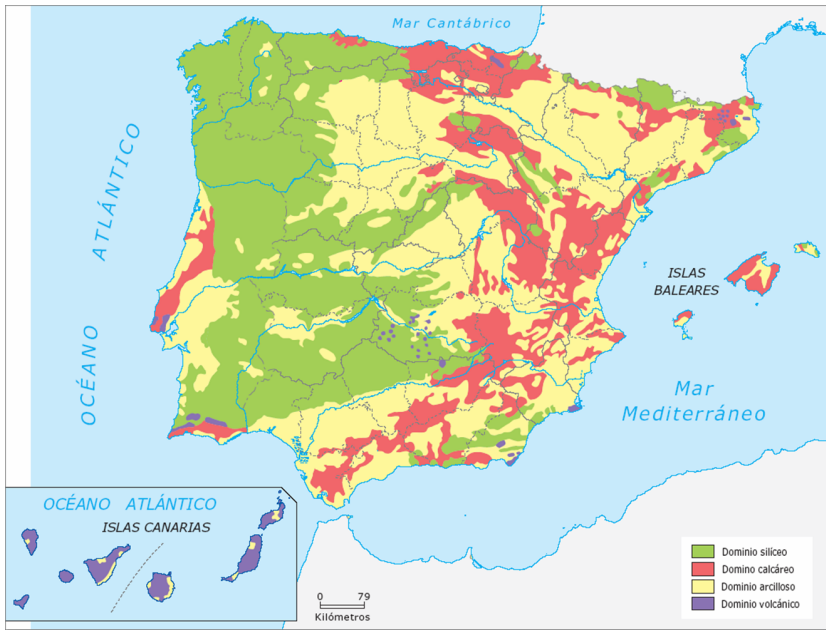


Figura 1.3: Tipos de suelos en la península Iberica.

Las zonas silíceas, en el mapa en verde, presentan mayoritariamente rocas graníticas. Estas tienen un elevado contenido de uranio y de radio, en relación a las demás, por lo que son las zonas en las que con mayor probabilidad encontramos elevadas actividades de radón en el ambiente.

En las zonas calizas y arcillosas, en el mapa en rojo y en amarillo, respectivamente, las rocas son de tipo sedimentario, marino o continental, que tienen menores contenidos de uranio y/o radio y por tanto una tasa de emisión gamma inferiores a las que presentan los suelos de tipo silicio.

Los suelos volcánicos, en morado, suelen contener minerales con elevadas concentraciones de metales pesados y urano silicatos.

La litología del suelo se corresponde perfectamente con la radiación gamma

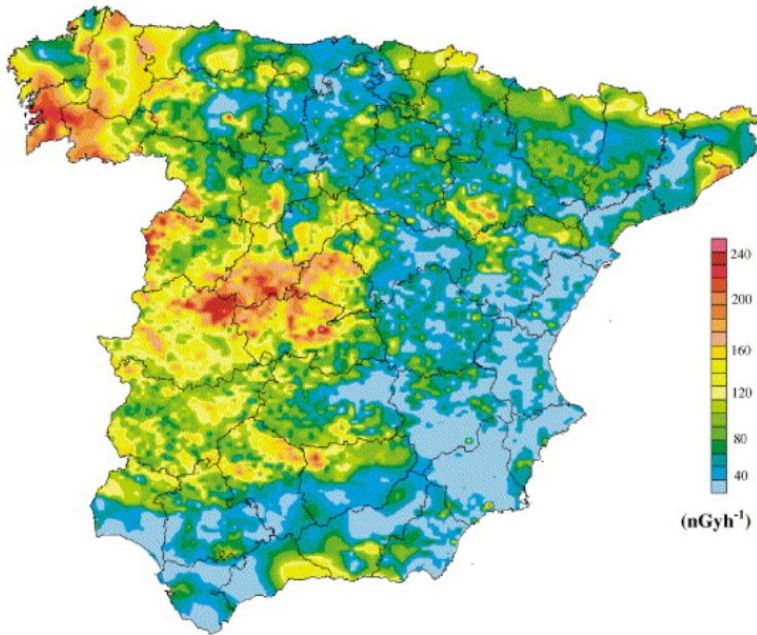


Figura 1.4: Mapa de radiación Gamma en España(MARNA2000).

que emite los distintos tipos de suelos. Esta elevada correspondencia podemos verla al observar y comparar el mapa litológico con el mapa de potencial de radón que deriva del proyecto MARNA [CSN00].

El proyecto MARNA evalúa la tasa de exposición gamma a un metro del suelo en España y fue llevado a cabo por el CSN con colaboración de otros organismos como ENUSA, y universidades, entre las que se encuentran la Universidad de Extremadura y la Universidad de Salamanca.

Posteriormente, y a partir del mapa MARNA se elaboró el *Mapa de predictivo de exposición al radón* [GT13a], teniendo en cuenta la emanación de radón que se puede llegar a dar a partir de los contenidos de radio y uranio en el suelo y la permeabilidad y porosidad de estos entre otros factores. Este mapa dividía el terreno en tres categorías de menor a mayor potencial de exposición en viviendas: la categoría de bajo riesgo (0), representa zonas donde las concentraciones de radón en viviendas serían inferiores a 150 Bq/m^3 , la categoría media (1) para concentraciones entre 150 y 300 Bq/m^3 , y la categoría alta (2),

para concentraciones superiores a 300 Bq/m^3 , este mapa se muestra en la figura 1.5 [GT13b].



Figura 1.5: Mapa de categorías de exposición potencial de radón (CSN, 2013).

Como puede apreciarse, las zonas catalogadas como 1 y 2 son las zonas silíceas. Como categoría 2 quedan clasificadas aquellas que son más graníticas, como la Sierra de Madrid, los montes de Toledo, Ávila, Cáceres, la zona oeste de Salamanca y Zamora, y las provincias del sur de Galicia, Orense y Pontevedra, y la zona Pirenaica, aunque hay algunas excepciones como los afloramientos de materiales primarios de Ciudad Real. Las zonas con presencia arcillosa se encuentran en las catalogadas como 1, las provincias de Zaragoza, Teruel, Badajoz, el norte de Galicia, A Coruña y Lugo y algunas zonas más pequeñas dispersas por toda la península y las islas.

En el año 2019 el CSN elaboró un nuevo mapa de potencial de radón que sustituye al publicado en el año 2013 [GT19]. Para la elaboración de este nuevo mapa, se ha utilizado, además de la información aportada por el mapa de radiación gamma, MARNA, el mapa litoestratigráfico de España del Instituto Geológico y Minero de España, IGME, 2009, y una colección de más de 12000

medidas reales en casas que posee el CSN recopilada de numerosos estudios realizados desde los años 90 por diferentes instituciones y universidades, entre las que se encuentra, el Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universitat de Valencia, en el que se realiza la presente tesis. En él además se han incluido las ciudades autónomas Ceuta y Melilla, que no se encontraban en el anterior. Este nuevo mapa clasifica las zonas en 5 niveles, como se muestra en la figura 1.6. El P90 es el percentil 90 de la distribución de los niveles de radón en los edificios de la zona, y quiere decir que un 10 % de los edificios presentan esos niveles de radón. Por ejemplo, en una zona con un potencial $P90 > 400 \text{ Bq/m}^3$ el 10 % de los edificios este área presenta concentraciones superiores a 400 Bq/m^3 .

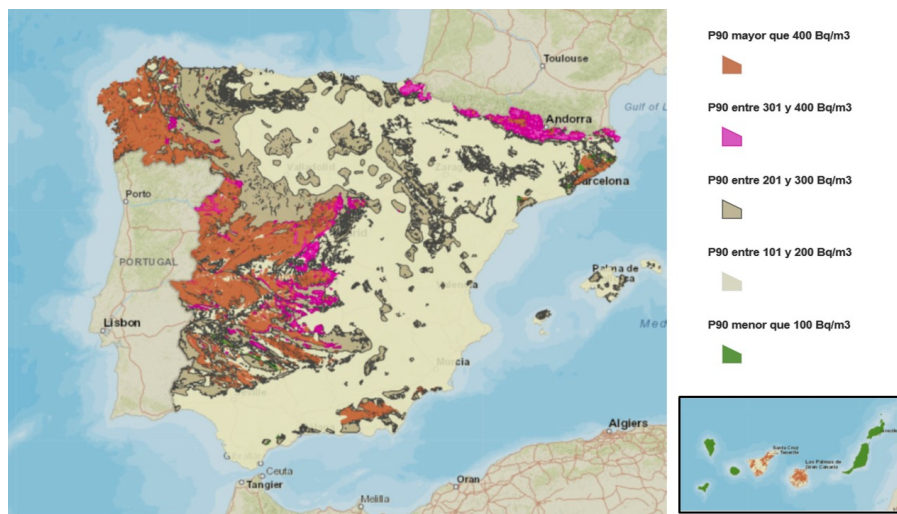


Figura 1.6: Mapa potencial de radón en España, CSN2019.

Los mapas potenciales de radón son muy útiles para predecir las cantidades de radón que se puedan liberar en un terreno, de importante aplicación para tomar medidas preventivas ante nuevas construcciones y decisiones sobre las regulaciones que se han de llevar a cabo. Sin embargo, no puede predecir el riesgo individual de un determinado edificio o construcción, que solo se puede conocer midiendo [App13].

1.4.1. Radón en la Comunidad Valenciana

Como se puede apreciar en los mapas del apartado anterior, § 1.4, en las figuras 1.5 y 1.6, en la Comunidad Valenciana, las concentraciones de radón son de las menores en toda España y solo en algunas zonas el 10% de los edificios presentarían niveles de radón de entre $101 - 200 \text{ Bq/m}^3$.

Durante el comienzo de los años 90 se llevó a cabo un programa de medidas de radón por parte del CSN *Medidas de radón en viviendas españolas Caracterización de sus fuentes 198* [CSN98], en colaboración con algunas universidades, entre ellas la Universidad de Valencia.

Dentro de este programa, el Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Valencia, como parte del IFIC (Instituto de Física Corpuscular), realizó tres campañas de medidas, una por provincia de la comunidad, encontrando valores medios relativamente bajos y muy por debajo de los establecidos como riesgo [Amo95]. Los resultados de este estudio se resumen en los siguientes párrafos.

En la provincia de Valencia se realizó la campaña en dos tandas, una en lugares públicos, institutos de bachillerato todos ellos, con una media de $18,5 \text{ Bq/m}^3$, y otra en 437 edificios de diverso tipo la totalidad de la provincia, con una media de 37 Bq/m^3 .

En la provincia de Castellón la media de radón calculada en aquellos años fue de 52 Bq/m^3 , con valores mínimos de $37,7 \text{ Bq/m}^3$ en la zona del Alto Millares, y máximos de 98 Bq/m^3 en casas de la zona del Alto Maestrazgo.

En la provincia de Alicante, la media se estableció en $40,9 \text{ Bq/m}^3$, con valores también muy variables que van desde los $17,6 \text{ Bq/m}^3$ en la zona de la Vega Baja, hasta los $104,1 \text{ Bq/m}^3$ en zonas de L'Alcoià.

Aunque las medias se encuentran en niveles lo suficientemente bajos como para considerar las tres provincias dentro de la zona de poco riesgo radiológico por exposición al radón, dentro de la campaña se detectaron niveles altos en algunos edificios antiguos, como iglesias, almacenes cerrados o depósitos de agua, que son lugares más propensos a acumular radón e incluso en algunos domicilios particulares.

Más allá de este estudio, existe muy poca bibliografía sobre radón en la Comunidad Valenciana. Sobre radón en aire podemos encontrar algunos estudios en túneles del metro o lugares subterráneos en Alicante [RM19, RM18], y en

algunas casa cueva que hay en Crevillente [Pie15]. También en Alicante, en la Cueva del Rull, de la que se presentan resultados en esta tesis, en el que se estudia el comportamiento del CO_2 y se compara con el del gas radón [Pla16]. Además de varios artículos sobre una planta de tratamiento de aguas en la provincia de Castellón [FC11, Rod12, JV15, Mar17].

En aguas la bibliografía es aún más escasa y solo se encuentran artículos relacionados con la descarga del acuífero jurásico en la Marjal de Peñíscola [Mej12], que se relaciona con la planta de tratamiento de aguas antes mencionada y del Mar Menor [Coc13].

En la zona de la Comunidad Valenciana según los mapas predictivos la concentración de radón no es elevada en el terreno. Sin embargo, encontramos algunos sistemas, que por sus características, tienen peligro de acumulación de radón, como cuevas, pozos o explotaciones industriales que utilizan aguas subterráneas, que son algunos de los lugares que se estudian en este trabajo.

Parte II

MATERIAL Y MÉTODOS

Capítulo 2

Determinación de radón en aire

2.1. Tipo de detectores para la medida de radón en aire

Existe una metodología muy diversa para la determinación de radón en aire que se puede utilizar atendiendo a las necesidades de la medida. Los métodos de medida de radón en el aire se clasifican en función de la forma en que realizan la medida como métodos de medida en continuo, también llamados activos o métodos de medida integrada o pasivos.

2.1.1. Detectores pasivos

Los métodos pasivos consisten en la exposición de un detector durante un período de tiempo y su posterior medida con otro tipo de instrumentación. El resultado que se obtiene es una concentración de radón integrada durante el tiempo de exposición, por lo que suelen utilizarse para hacer medidas de largos períodos de tiempo. Son dispositivos de este tipo los electretes, las canister de carbón activo y los detectores de trazas.

En este trabajo se han utilizado canister de carbón activo y detectores de trazas de dos tipos de material CR-39, marca comercial RADONOVA, y LR115 de GT-ANALYTIC y ALGADE. Todos ellos se describen a continuación.

1) Canister de Carbón Activo



Figura 2.1: Canister de Carbón activo en exposición y cerradas.

Una canister es una caja redonda de aluminio de 10,3 cm de diámetro y alrededor de 3 cm de alto, que contiene 70 ± 1 g de carbón activado, sobre el cual se produce la adsorción del gas radón. (Fig 2.1).

El carbón está recubierto por una barrera de espuma y una malla metálica, que impide la salida del gas radón una vez adsorbido y la pérdida de carbón durante su transporte. La exposición de estos dispositivos puede realizarse de 2 a 7 días, dependiendo de la humedad que exista en el ambiente, debido a que la adsorción de agua es un problema que compite con la adsorción del gas radón. Si la humedad es elevada, puede llegar a saturar el carbón activo impidiendo que el radón sea adsorbido [Coh83, Geo84].

Las canister de carbón activo son de los dispositivos más antiguos con los que se comenzó a medir radón en aire. Hoy en día se siguen utilizando para

realizar medidas puntuales o para un mapeo o «screening» previo, identificar puntos de variación o zonas homogéneas de radón, y diseñar un plan de medidas de largo plazo con otro tipo de detectores con mayor tiempo de integración.

2) Detectores de trazas



Figura 2.2: Detectores pasivos de tipo abierto y cerrado.

Los detectores de película o detectores de trazas de estado sólido (SSNTD, Solid State Nuclear track detectors) son llamados así porque consisten en un material o película sensible a las radiaciones nucleares. El paso de una partícula cargada pesada, como las partículas alfa, produce sobre el material de la película una traza, que tras un revelado químico, puede observarse con un microscopio óptico. El número de marcas producidas en el material será proporcional a la concentración de radón a la que haya sido expuesto.

Existen dos tipos de detectores de trazas para radón según su configuración: de tipo abierto y de tipo cerrado. En la figura 2.2 se muestran como ejemplo un detector de cada uno de estos tipos.

Los detectores de tipo cerrado contienen la película dentro de un contenedor cerrado o cápsula, que permite la difusión del radón en su interior pero no la de sus descendientes sólidos que se encuentran en la atmósfera, de esta forma

en la película solo se registran las trazas generadas por el radón y por los descendientes de este que se han formado ya en el interior de la cápsula.

Por el contrario, los detectores de tipo abierto tienen esta película expuesta al exterior, por lo que en ella se registran las trazas generadas por el radón, y por sus descendientes que existan ya en la atmósfera.

Dependiendo del tipo de material existen dos tipos de detectores: CR39 y LR115.

El CR39 es un detector de policarbonato basado en una resina denominada Columbia 39. Este tipo de material es sensible a partículas alfa, protones, neutrones e iones pesados, que con su impacto rompen las uniones poliméricas del material. La longitud de las trazas dependerá de la energía depositada en el impacto, que en este material, es detectable desde 0,1 a 20 MeV. De este tipo de película, a lo largo de este trabajo, se han utilizado los suministrados inicialmente por RADONOVA, y posteriormente por su suministrador en España RADUCAN S.L. Ambos laboratorios están acreditados en UNE/EN-ISO17025, [ISO17] y/o por SWEDAC, que es el equivalente a ENAC en España.

Los detectores LR115 están formados por un sustrato de poliéster de 100 μm de grosor que se encuentra rodeado de una capa de nitrato de celulosa de 12 μm , que es el material sensible. Cuando una partícula impacta en el nitrato se rompe su estructura molecular, dejando una traza visible al microscopio, si esta se encuentra a un nivel de energía de entre 1,2 y 3,9 MeV. Este intervalo de energías hace que para la detección de las partículas alfa del gas radón y sus descendientes, cuyas energías son superiores, se necesite una distancia mínima entre el film y la fuente de radiación para que las partículas pierdan energía y estas energías caigan dentro de la zona de detección.

Los LR115 que se han utilizado de tipo abierto son de la marca GT-ANALYTIC, modelo KODALPHA de KODAK, mientras que de tipo cerrado se han utilizado los DPR2 de la marca ALGADE.

2.1.2. Detectores de medida en continuo

Estos métodos se realizan con detectores electrónicos. El aire/radón entra al detector mediante difusión o por bombeo y el radón o sus descendientes son medidos en su interior con diferentes tipos de detectores: detectores de silicio, cámaras de ionización o células de lucas. La lectura se puede realizar de forma

directa, lo que permite ver la concentración en tiempo quasi real. Registran la concentración de radón en función del tiempo, por lo que se pueden utilizar para observar las variaciones de radón o tener en cuenta períodos diferentes en los que hay o no presencia de personas expuestas al gas.

Existen diferentes equipos electrónicos de medición de radón en el mercado, en este laboratorio se dispone de tres de ellos, suministrados por la marca SARAD GmbH, Radon Scout (Normal y Plus), Doseman y Doseman Pro, que a continuación describimos con más detalle.

1) Radon Scout y Radon Scout Plus

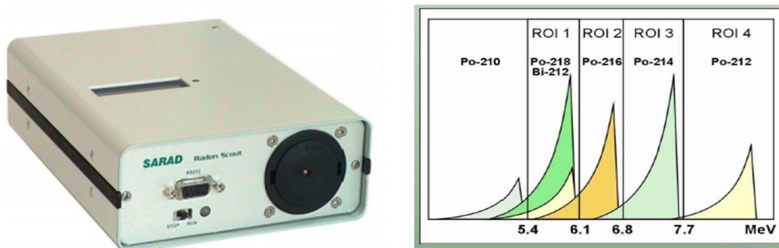


Figura 2.3: Detector electrónico Radon Scout Plus y forma del espectro. Obtenido de: <https://www.sarad.de>.

Estos equipos están diseñados por la marca SARAD. En el interior del equipo se mide el radón, que entra en el por difusión, impidiendo de esta forma la entrada de su progenie, mediante un detector de silicio alimentado por una fuente de voltaje, que detecta las partículas alfa producidas por el radón y por los descendientes ya formados en el interior de la cámara del equipo. Un analizador multicanal, MCA, recoge y acumula todos los eventos. En la figura 2.3 se representa el equipo y un ejemplo del espectro que se recoge.

Tiene dos modos de trabajo, FAST MODE, que realiza el análisis de la actividad de radón solo a través de la detección alfa de ^{218}Po con lo que el valor puede ser presentado en 12 – 15 min, y SLOW MODE, que calcula la actividad de radón en base a los decaimientos tanto de ^{218}Po como de ^{214}Po aumentando así la sensibilidad de detección al doble. Debido a los tiempos de desintegración

este modo aumenta el tiempo de respuesta a unos 150 min, por lo que utiliza intervalos de integración de 3h. Un mayor tiempo de integración proporciona una sensibilidad mayor y por tanto unos límites de detección inferiores. Si el tiempo de integración es corto o la concentración de radón es muy baja, el equipo registra un valor 0. Para una medida de 3 h, según el fabricante, el equipo marcará 0 si esta está por debajo de los 16 Bq/m^3 .

Estos equipos además tienen en su interior sondas de temperatura y humedad (el plus también de presión barométrica), que permite el estudio de las influencias de los cambios de estas con la concentración de radón registrada. Como extra, también posee un sensor de movimiento, que registra los movimientos producidos en el equipo durante su exposición para comprobar que el instrumento no se ha movido durante el período de medida. La memoria interna de estos equipos puede almacenar hasta 670 puntos de medición, que equivale aproximadamente a tres meses de datos si se registran cada 3 horas, lo que los hace ideales para realizar largas medidas en modo continuo. Los equipos utilizan dos pilas tipo D de 1,5 V. El Plus se puede conectar a una fuente de alimentación externa.

2) Doseman

El detector DOSEMAN, también de SARAD, tiene el mismo principio de funcionamiento que el anterior. Solo que es más pequeño, para que sea más manejable, lo que también se traduce en que su cámara de medida es más pequeña y por tanto tiene menor sensibilidad, por lo que es usado cuando se espera que las concentraciones de radón sean altas.

La difusión de radón al interior de la cámara se produce por medio de una membrana que permite la entrada del gas radón pero no de su progenie. Un detector semiconductor acoplado a una cadena electrónica registra las diferentes desintegraciones del gas. El sistema reconoce tanto las partículas alfa del gas radón como las de su progenie de vida corta emisora alfa producida en el interior. Un analizador multicanal recoge y acumula todos los eventos en 5 áreas o picos dependiendo de su energía, y nos da un espectro similar al proporcionado por el equipo Radón Scout, que se mostraba en la figura 2.3.

El equipo DOSEMAN fue inicialmente diseñado como dosímetro personal. Permite introducir el factor de equilibrio que se considere oportuno, un valor



Figura 2.4: Detector electrónico de radón Doseman.

prefijado o calculado para el lugar de uso, y con este estima las dosis en tiempo real que son recibidas por quien lo lleve, pudiendo avisar cuando se sobrepasa un límite de dosis estipulado. Además tiene una pantalla donde pueden observarse directamente las medidas realizadas.

3) Doseman Pro

Este equipo se utiliza para la medida de progenie de radón. El muestreo se realiza con una bomba de aspiración a través de un filtro que deja pasar y salir al gas radón mientras que produce la retención de su progenie sólida, tal y como se representa en la figura 2.5. Esta progenie retenida en el filtro es medida mediante espectrometría alfa con un detector de estado sólido muy próximo al filtro, que registra las partículas alfa según sus energías en un analizador multicanal, MCA, de forma similar al anterior. Este equipo nos aporta como datos la energía potencial alfa, PAEC, de la mezcla de descendientes real que existe en el medio, y la concentración equivalente de progenie de radón en el equilibrio, EEC, lo que nos permite calcular el factor de equilibrio entre radón y progenie, tal y como se explicó en la introducción teórica en el apartado § 1.2.4, al utilizar este equipo en conjunto con un equipo de medida de radón.

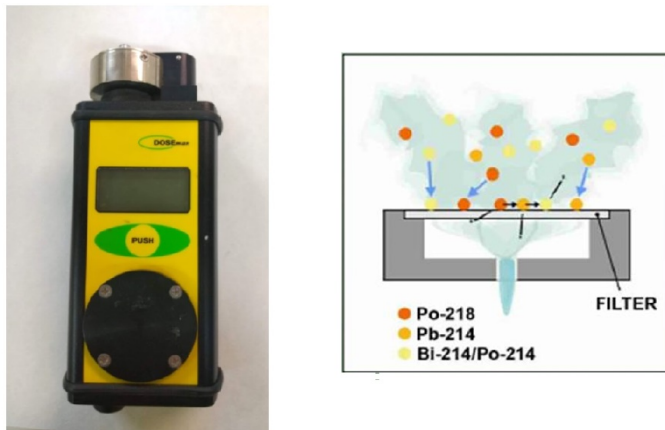


Figura 2.5: Equipo de medida de progenie de radón Doseman-Pro y esquema de retención.

Obtenido de: <https://www.sarad.de>.

2.2. Exposición de los detectores

Existen unas indicaciones generales para la toma de muestra, medida indirecta, o medida directa de radón, contempladas en las guías 11.01 *Directrices sobre la competencia de los laboratorios y servicios de medida de radón en aire* [CSN10] y 11.04 *Metodología para la evaluación de exposición al radón* [CSN12c], del Consejo de Seguridad Nuclear. En ellas aconseja a los laboratorios como realizar las medidas: tiempos, lugares, condiciones y densidad de detectores que deben exponerse. Dependiendo del tipo de detector que se utilice y la función que se desee cubrir con la medida tendremos unas consideraciones diferentes.

2.2.1. Exposición de canister de carbón activo

Como se ha explicado previamente, las canister de carbón activo, son dispositivos que pueden ser utilizados durante cortos períodos de tiempo. Para que estas medidas sean representativas de las acumulaciones máximas de radón que puedan llegar a darse en ese período de tiempo, deben tenerse en cuenta las directrices de las guías de recomendación del CSN [CSN12c].

Las ventanas y las puertas exteriores deben permanecer cerradas durante al menos las 12 h previas a la colocación de los detectores, pudiéndose llevar a cabo únicamente las actividades habituales de entrada y salida al edificio, procurando tener abierta la puerta el menor tiempo posible. Estas condiciones de edificio cerrado deben mantenerse durante todo el tiempo de la exposición. En el caso de que ya existan en la instalación dispositivos de mitigación de radón, deberán estar encendidos desde 12 h antes de la exposición, para tomar una muestra representativa de la instalación y las condiciones reales a las que podrían estar expuestos los trabajadores. Los detectores deben estar expuestos al aire que respiran las personas, por tanto se deben situar a una altura no inferior a 50 cm sobre el nivel del suelo, a una distancia de más de 30 cm de paredes y 10 cm de otros objetos, y nunca dentro de armarios ni en zonas donde existan corrientes de aire [CSN12c].

Antes de cada exposición se elimina todo el posible radón que las canister puedan contener introduciendo estas, abiertas, en una estufa a 90 °C durante un mínimo de 24 h. Una vez apagada la estufa se dejan enfriar dentro por un

breve período de tiempo y se cierran y sellan. Es importante anotar su peso para conocer la cantidad de agua que adsorben durante la exposición.

Para realizar la exposición propiamente dicha, una vez elegido el lugar donde se va a situar, basta con quitar la tapa superior y dejarla expuesta el tiempo necesario, anotando la fecha y hora de inicio y final de esta. La exposición se acaba cuando la canister se vuelve a cerrar.

2.2.2. Exposición de detectores de trazas

Este tipo de detectores se utiliza para realizar medidas de largos períodos de exposición, por lo que no es necesario favorecer las condiciones de edificio cerrado que se describían en el apartado anterior, aunque sí las recomendaciones sobre colocación, con respecto a la altura y el distanciamiento de objetos, para permitir el paso normal de aire a su alrededor. Una vez elegido el lugar donde se van a exponer se fijan, en la medida de lo posible, con ayuda de cuerdas o bridas, ya que el hecho de estar largos períodos hace posible su pérdida si estos no están fijados. Al igual que con las canister de carbón activo, como el resultado que ofrecen estos detectores es una medida integrada, se debe anotar la fecha inicial y final de la exposición, para poder calcular así la actividad media en el tiempo.

2.2.3. Exposición de detectores electrónicos

Al igual que en el caso anterior, estos detectores se han utilizado para hacer medidas de largos períodos de tiempo, de entre uno y tres meses, por lo que no es necesario crear condiciones de edificio cerrado, sino condiciones representativas de la realidad.

A la hora de exponer estos detectores, una vez escogida su situación, es tan sencillo como encenderlos. No sin antes asegurarse de haber configurado el instrumento para realizar las medidas en el modo que se desee dentro de sus dos variedades (SLOW/FAST), tener la hora y la fecha ajustadas y estar seguros de que va a tener la suficiente batería y memoria para el tiempo que se van a dejar expuestos.

2.3. Medida de los detectores

2.3.1. Canister de Carbón activo

La medida de las canister, una vez expuestas, se realiza con un detector gamma de tipo NaI, mediante la detección de los descendientes de radón de vida corta, ^{214}Pb (fotopicos de 295 keV y 352 keV), ^{214}Bi (fotopico 609 keV), tal como se describe en el protocolo de la agencia de protección del medio ambiente, EPA 52/5-87-005 [Gra87]. El sistema de detección empleado ha sido un detector de Na (Tl) 3x3 de la marca Scionix (760 keV), recubierto de un blindaje de anillos de plomo y una electrónica asociada, Spetech UCS 30, figura 2.6.

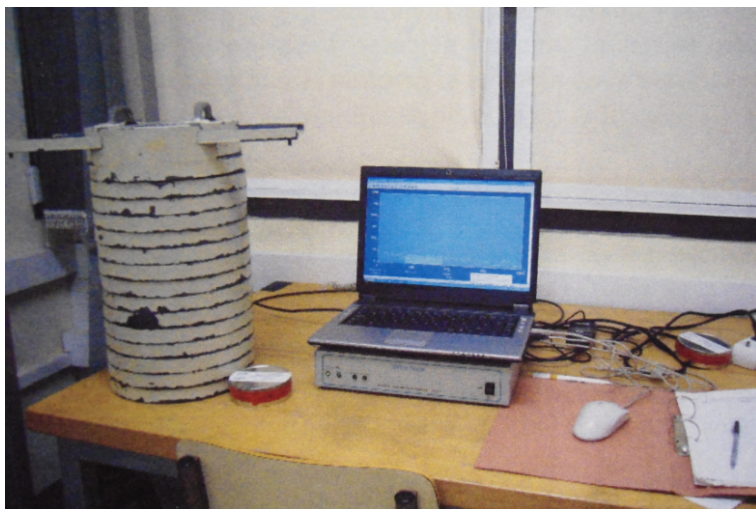


Figura 2.6: Espectrómetro gamma NaI utilizado para la medida de las canister.

El cálculo de radón se realiza con el programa **R**, programado y cedido por J.J Llerena (Universidad de Santiago), que es una adaptación para Windows de PCA-Radon Tennelec. Este programa permite calcular la concentración de radón en la canister medida por comparación en eficiencia a la respuesta de una canister patrón de actividad conocida de ^{226}Ra y a un calibrado dependiente de la humedad adsorbida por la canister expuesta, que se determina como diferencia de peso antes y después de la exposición.

La canister patrón utilizada tiene una actividad de $14100 \text{ pCi} \pm 5\%$ a fecha 18/04/88, suministrada por *The Nucleus inc.* y trazada a la referencia *National Bureau of Standards 4953D*.

La respuesta neta de la canister muestra, en cuentas por segundo, se calcula como diferencia de las cuentas de esta con las cuentas que ofrece una canister blanco, que es una canister completamente limpia que nunca ha sido expuesta:

$$Cps_{netas} = cps_{muestra} - cps_{blanco} \quad (2.1)$$

A partir de estas cuentas netas se obtiene la concentración de radón como:

$$CRn = \frac{(cps_{netas})}{(TS \cdot E \cdot FD \cdot FC)} \quad (2.2)$$

donde TS es el tiempo de exposición de la canister, E es la eficiencia del detector, en el intervalo de energías entre 295 – 609 keV y con la geometría utilizada, y se cuantifica como:

$$E = \frac{cps_{patrón} - cps_{blanco}}{t \cdot A_{patrón}} \quad (2.3)$$

FD es el factor que corrige la desintegración del radón durante la exposición, es decir, entre el inicio y el final de la misma, que se calcula desde la mitad del período de exposición y el inicio de la medida de la canister en el detector de NaI como:

$$FD = e^{(-\ln(2) t)/(T_{1/2})} \quad (2.4)$$

siendo t el tiempo entre el inicio de la exposición y el inicio de la medida, y $T_{1/2}$ el período de semidesintegración del radón. FC es el factor de calibración del carbón activo en función de la humedad absorbida por la canister. Este valor esta tabulado en el protocolo de la EPA hasta una absorción de 8 g. Si el agua que ha absorbido la canister es superior a este valor, no se podrá realizar la corrección por humedad, por lo que la medida será desestimada.

2.3.2. Detectores de película

Los detectores de película son enviados al laboratorio que los suministra para su medida y este nos proporciona posteriormente el informe con la actividad de radón.

A continuación se describe brevemente la técnica usada en los laboratorios de medida.

Los materiales de las películas, tanto LR115 como CR39, son caracterizados por el suministrador antes de ser insertados en el detector propiamente dicho. De cada hoja de material, a partir de la cual preparan un set de detectores, se estudia su fondo y su sensibilidad. Ambos característicos de cada hoja o set debido al propio proceso de fabricación y las condiciones de esta. La sensibilidad del material determina la eficiencia de este, que se calcula como la concentración medida en la la hoja frente a una concentración real a la que ha sido expuesta. Debido a ello, los suministradores envían cada uno de los detectores con un código que asegura la trazabilidad del material.

Una vez los detectores han sido expuestos se envían al laboratorio identificados con su numeración. El laboratorio de medida revela el material por inmersión en una disolución básica. Después de este revelado las trazas, ya visibles al microscopio, son contadas automáticamente y la concentración de radón se calcula en función a la densidad de trazas que exista en la película como:

$$Dt = \frac{\text{Total trazas}}{\text{Area}} \quad (2.5)$$

Teniendo en cuenta la eficiencia del material, el radón que habrá impactado en la película es, según el laboratorio de medida:

$$Rn = \frac{Dt}{\text{Eficiencia}} \quad (2.6)$$

La concentración media de radón que hay en la zona donde ha sido expuesto el detector durante un determinado período de tiempo se estima después como:

$$\bar{Rn} = \frac{(\text{Radon total})}{(\text{Tiempo de exposicion})} \quad (2.7)$$

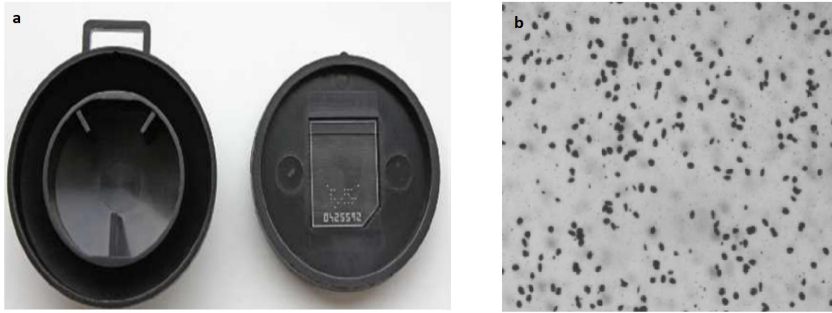


Figura 2.7: Detector de película CR39

a) Cápsula abierta que muestra la película. b) Imagen de las trazas que el radón deja en la película.



Figura 2.8: Detector de Película LR 115 y representación del tamaño de las trazas en la película.

2.3.3. Detectores electrónicos

En los detectores electrónicos las concentraciones de radón se leen directamente conectando estos a un ordenador a través del programa RadonVision de SARAD GmbH.

Una vez descargados los datos registrados al programa se obtiene una gráfica como la que se presenta en la figura 2.9. La línea verde marca las concentraciones de radón medidas cada 3 horas, en este ejemplo, pero pueden seleccionarse horas diferentes de intervalo de medida. En esta gráfica se puede seleccionar todo el intervalo de tiempo, o ver la concentración de radón en períodos, fechas u horas concretas. La línea roja marca la temperatura que existe en el lugar donde se está midiendo y la línea azul la humedad. Estos datos se pueden exportar en forma de texto a cualquier otro programa, como Excel, para hacer el tratamiento que se desee.

Si los datos han sido adquiridos con un instrumento que utiliza la espectrometría alfa también podremos ver el histograma por agrupación en energía, de la forma que se muestra en la figura 2.10, donde se muestran los rangos de energía que se han utilizado para hacer los cálculos de radón. Todos estos detectores se calibran en la casa de su suministrador, en una cámara de radón trazada al PTB (Physikalisch Technische Bundesanstalt, Alemania).



Figura 2.9: Representación del registro de radón en función del tiempo-Software Radon Vision.

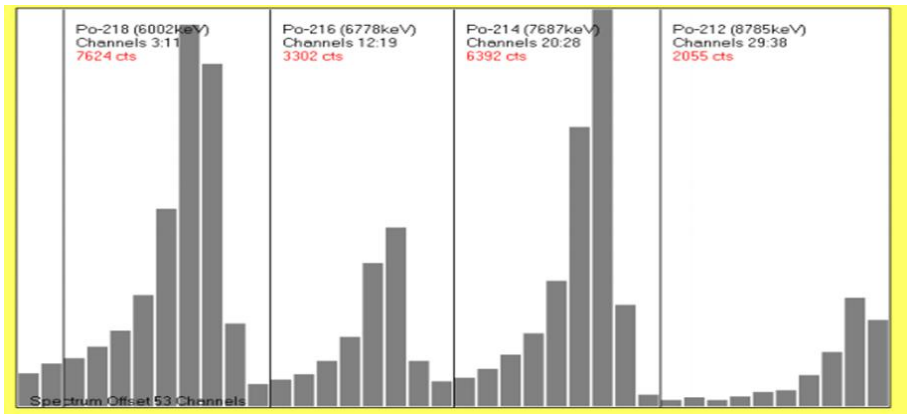


Figura 2.10: Histograma de los equipos Radon Scout y Doseman.

2.4. Comparación de técnicas de radón en aire

Todos los dispositivos descritos en las secciones anteriores han sido utilizados para realizar medidas en diferentes lugares seleccionando cada uno en base a sus características y la necesidad de la medida. Los equipos electrónicos, se calibran y se limpian, en el caso de que sea necesario, en la casa suministradora. Los detectores de película pertenecen a laboratorios certificados, que participan en intercomparaciones y que tienen cada set de detectores evaluado. Aún así hemos realizado comparaciones entre ellos en nuestro laboratorio, en las instalaciones de la Universidad y en algunas zonas seleccionadas por sus condiciones ambientales, que se citarán después.

2.4.1. Comparación de técnicas de medidas de radón en aire a bajas concentraciones de radón

Para comparar los equipos se han realizado exposiciones en las instalaciones de la Universitat de València, en el Campus de Burjassot-Paterna, y algunas propiedades privadas, seleccionando lugares que se encontraran bastante cerrados y sin ventilación, tales como sótanos, archivos o almacenes que no se abren comúnmente, que pudieran ser más propensos a acumular el gas radón, ya que en la zona de València, como se ha visto en la introducción teórica, las concentraciones de este son bajas y la mayoría de las veces se encuentran valores por debajo de los límites de detección.

Se realizaron dos exposiciones consecutivas de los detectores de trazas en los lugares seleccionados en diferentes épocas del año, durante el invierno de diciembre a marzo, y en primavera, de marzo a mayo, los resultados de estos detectores pueden verse en la tabla 2.1.

Tabla 2.1: Comparación de las concentraciones de radón medidas con LR115 y CR39.

Lugar de exposición	Invierno		Primavera	
	^{222}Rn (Bq/m ³) LR115	^{222}Rn (Bq/m ³) CR39	^{222}Rn (Bq/m ³) LR115	^{222}Rn (Bq/m ³) CR39
1	36±9	41±23	28±14	18±13
2	16±6	11±8	<4	31±20
3	12±5	<10	23±8	<10
4	21±7	16±8	14±7	39±21
5	40±10	23±12	23±8	44±22
6	44±12	69±33		

Las concentraciones observadas en ambas exposiciones son, por lo general, muy bajas y similares en ambas. Los detectores LR115 ofrecen resultados más precisos que los CR39, ya que estos últimos llegan a tener más de un 50 de incertidumbre. A simple vista, se observa que los valores son diferentes entre sí, pero que debido a que la incertidumbre de los detectores CR39 es muy elevada, las concentraciones con sus incertidumbres se encuentra en intervalos que se solapan para ambos detectores. Un análisis estadístico de los datos, con un test t de Student realizado sobre aquellos pares de datos que dan ambos por encima del límite de detección, nos ofrece un $pvalor = 0,43$ con un nivel del 95% de confianza de que los métodos sean comparables, es decir, los datos arrojados por los detectores LR115 y los CR39 pueden considerarse resultados comparables entre sí para estas actividades de radón.

En estos lugares también se han expuesto detectores electrónicos Radon Scout, los cuales han dado valores por debajo del límite de detección, debido a que, aunque se han expuesto el mismo tiempo, las medidas que estos realizan son integradas de 3 horas (Modo SLOW) por lo que se recoge una larga serie de datos y la mayoría de ellos ofrecen un valor 0, al encontrarse por debajo de su límite de detección en ese tiempo de integración. Por ello, no podemos realizar una comparación realista con ellos, solo podemos indicar que son menos sensibles y tienen un límite de detección superior. Teniendo en cuenta estas limitaciones, podrán ser útiles para medir concentraciones más elevadas.

2.4.2. Comparación de técnicas de medidas de radón en aire generando altos niveles de radón

Debido a que las concentraciones de radón encontradas en las instalaciones de la Universidad son muy bajas e incluso, como se ha visto en el apartado anterior, muchas de ellas dan valores por debajo de los límites de detección, para comparar los detectores con cantidades de radón más elevadas se construyó una cámara de radón en una antigua estufa de laboratorio que se muestra en la figura 2.11.

Para generar diferentes niveles de radón en el interior de la cámara se introdujeron dentro diversos minerales que contienen uranio, de una colección que posee el laboratorio que se muestra en la figura 2.12. Los minerales introducidos se cambiaron en función de la cantidad requerida del gas. Las condiciones ambientales determinaron de forma natural la mayor o menor exhalación y acumulación de radón en el interior de la cámara. Para evitar que el radón pudiera salir de la cámara se sellaron con cinta adhesiva todas las posibles rendijas por las que pudiera haber un intercambio de aire interior-exterior.

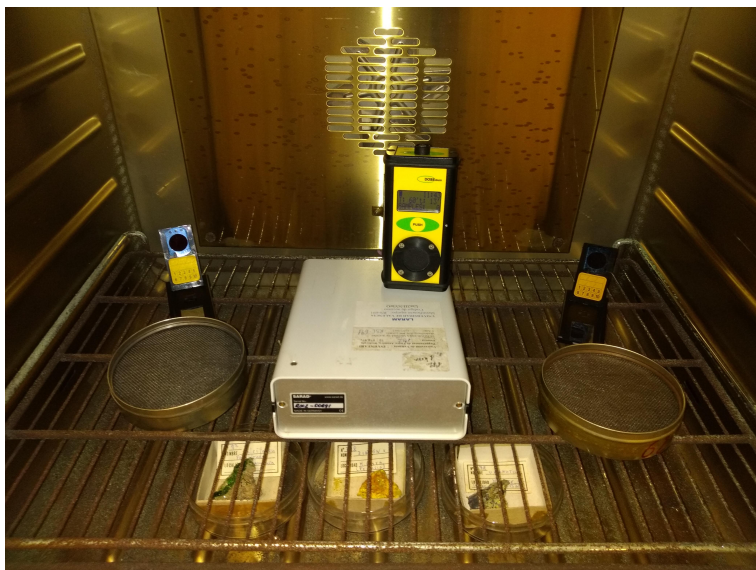


Figura 2.11: Estufa utilizada como cámara de radón con los detectores en su interior.



Figura 2.12: Colección de minerales utilizados para generar radón.

En un primer test se introdujeron todos los detectores por duplicado en nuestra cámara de radón, junto con todos los minerales de uranio de los que se disponía. La exposición se realizó durante 330 h, a excepción de las canister, que se fueron cambiando semanalmente, por lo que los resultados que se muestran son resultados medios de estas. La humedad y la temperatura, que se registran en los detectores electrónicos Radon Scout, variaron entre el 50 y el 70 % y los 20 – 25 °C, respectivamente.

Como se observa en el gráfico 2.13, en esta primera exposición, 1, a excepción de los detectores LR115, todos los detectores ofrecen valores comparables dentro de sus intervalos de confianza.

Para comprobar si el problema de los detectores LR115 era el proceso de deposición de los descendientes del radón sobre la película, se realizó una nueva exposición, 2, para la que se introdujeron dos detectores LR115 en unas cápsulas que vende el suministrador para utilizarlos como de «tipo cerrado» y se realizó una exposición similar a la anterior junto con otros dos detectores LR115 de tipo abierto, dos canister de Doseman carbón activo y un detector electrónico. En esta ocasión, se utilizó el equipo Doseman que se acababa de recibir calibrado. Se especificó en el envío de los detectores para revelar cuales de ellos se habían utilizado de forma cerrada y cuales abiertos, ya que la calibración es diferente

para ambos. Los resultados se muestran en el gráfico 2.14.

Los datos ofrecidos por los pares de detectores LR115 son dispares entre sí, tanto para abierto como para cerrado. Uno de los detectores ofrece resultados similares a los que tomados como referencia (las canister y el detector doseman) pero el otro detector no, el abierto por defecto, igual que en la exposición anterior, y el cerrado por exceso.

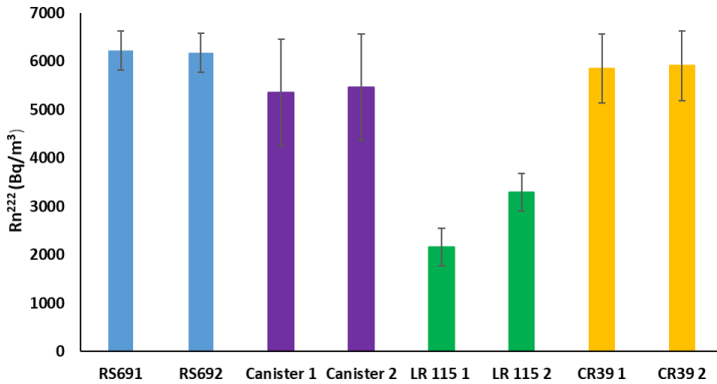


Figura 2.13: Evaluación de diferentes detectores en el laboratorio 1..

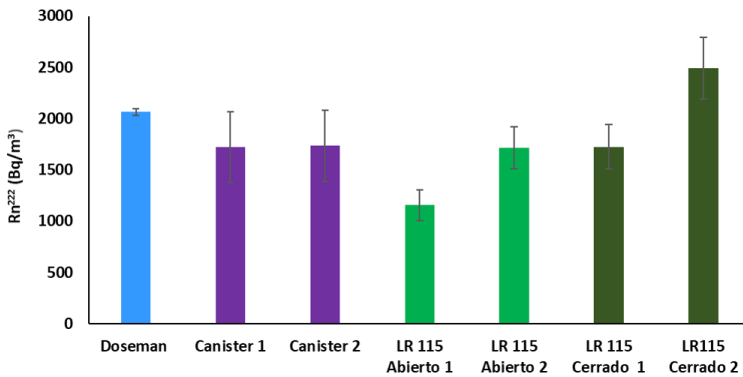


Figura 2.14: Evaluación de diferentes detectores en el laboratorio 2.

2.4.3. Comparación de técnicas de radón en aire en lugares con elevada humedad

Para hacer una comparación del comportamiento real de los detectores en los lugares en los que van a ser utilizados se han expuesto en el interior de la cueva de Sant Josep que tiene un alto porcentaje de humedad, entre un 80 y un 95% y una temperatura de 20 ± 1 °C. Esta cueva es la que se estudia en el Capítulo 5 de esta tesis.

Visto el comportamiento de los detectores a elevadas concentraciones en el laboratorio, para calcular las actividades en zonas que se conozca que existe mucho radón se han descartado los detectores LR115 y también las canister, en este caso no por sus resultados dispares, si no porque su uso implica cambiarlos cada pocos días, especialmente si la humedad es muy elevada. Por lo tanto, los detectores que se utilizarán en este tipo de instalaciones son los detectores de película CR39 y los equipos electrónicos.

Para comparar estos dos tipos de detectores se realizaron diferentes exposiciones en el mismo punto de la cueva. Los detectores electrónicos se recogen una vez al mes para analizar sus datos y los CR39 cada 3 meses.

Los resultados de esta comparación se muestran en la tabla 2.2. Como se puede apreciar las actividades medias de ambos detectores son solapables si se tienen en cuenta sus incertidumbres. La gran dispersión de los datos con los detectores electrónicos, en las medias de tres meses es debida a la fluctuación de radón que hay en el ambiente, que como se puede apreciar, en los datos recogidos mes a mes con Radon Scout pasa desde los 4000 a los 12000 Bq/m³, o inversamente, de los 6000 a los 1000 Bq/m³ en solo un mes. Esta variación no es observable en las medidas integradas de los detectores pasivos, que nos ofrecen como incertidumbre la propia de la técnica de medida.

Tabla 2.2: Comparación RScout y CR39 en condiciones de elevada humedad.

Exposición	^{222}Rn (Bq/m ³)	^{222}Rn (Bq/m ³)	^{222}Rn (Bq/m ³)
	CR39	RScout mensual	RScout promedio trimestral
1 mes	$(3,3 \pm 0,7)x10^2$		$(3,0 \pm 0,5)x10^2$
3 meses	$(76 \pm 14)x10^2$	$(4,0 \pm 0,8)x10^2$	$(93 \pm 46)x10^2$
		$(120 \pm 24)x10^2$	
		$(120 \pm 24)x10^2$	
3 meses	$(47 \pm 8)x10^2$	$(60 \pm 11)x10^2$	$(28 \pm 28)x10^2$
		$(10 \pm 7)x10^2$	
		$(13 \pm 5)x10^2$	

2.5. Conclusiones

Como conclusión de estas comparaciones se podría decir que los detectores electrónicos, las canister y los detectores CR39 ofrecen resultados comparables entre sí y podríamos utilizarlos indistintamente en diferentes tipos de ambiente. Los detectores LR115 de tipo abierto ofrecen resultados por debajo de las lecturas tomadas como referencias, sobre todo en lugares de elevada humedad, hecho que se ha reportado en otras publicaciones como [CSN16].

Las canister de carbón activo, que han sido ampliamente utilizadas y que actualmente los laboratorios han sustituido por dispositivos más modernos, siguen ofreciendo valores altamente fiables y comparables con los nuevos dispositivos. Su principal desventaja es que no se pueden realizar medidas de períodos largos, aunque como se ha visto, los valores medios de exposiciones continuadas arrojan resultados equiparables a los obtenidos con los detectores de medida integrada, pero el hecho de tener que cambiarlos una o varias veces por semana es un trabajo tedioso e incómodo.

Los detectores de película CR39 ofrecen resultados muy fiables y comparables al resto de técnicas que utilizamos, por lo que podremos utilizarlos para obtener medidas de largos períodos. Su uso es sencillo y económico pero no nos permiten analizar las variaciones de radón en función del tiempo.

Los detectores electrónicos, aún con unos límites de detección superiores, son comparables al resto de técnicas utilizadas y permiten almacenar un gran número de datos. La mayor ventaja de utilización de estos equipos es poder observar las variaciones de concentración de radón por horas, días o por cambios ambientales. Además, una vez calibrados en la casa suministradora, su manejo es muy sencillo

Capítulo 3

Determinación de radón en agua

Las aplicaciones de la detección y cuantificación de radón en agua son muy variadas. En principio, su aplicación más directa es la de controlar la ingesta de este radionúclido en aguas de consumo, o la de conocer las concentraciones que pueda emanar en casas a las que lleguen aguas subterráneas. Aunque también son muy utilizadas para investigaciones geológicas como el estudio de comportamientos de acuíferos o de descargas de agua subterránea en ríos y lagunas.

Los métodos utilizados para la determinación de radón en agua son tan numerosos como sus aplicaciones. Métodos de emanometría, que consisten en desgasificar el agua y medir el radón que emana por los métodos utilizados para la medida en aire, métodos de espectrometría gamma donde se mide directamente las radiaciones gamma producidas por los descendientes emisores gamma, o métodos de centelleo líquido, donde se utilizan las radiaciones del propio radón y de sus descendientes alfa de vida corta, que es de las más utilizadas.

En este apartado se explican las técnicas de centelleo líquido y de espectrometría gamma, así como la optimización que se ha realizado en el laboratorio para la obtención de resultados con ambas técnicas y una comparación entre ellas.

3.1. Centelleo líquido

3.1.1. Principios de centelleo líquido

El centelleo líquido es una técnica ampliamente utilizada para la detección de las radiaciones ionizantes, ya que permite la detección de cualquier tipo de partícula alfa, beta o gamma. El fundamento del centelleo líquido se basa en la transformación de la energía de las radiaciones en energía luminosa, utilizando para ello un líquido centellador, y su posterior detección en pulsos con ayuda de un fotomultiplicador.

Los líquidos centelleadores suelen estar compuestos de un disolvente y sustancias centelleadoras que pueden excitarse con la energía producida por las radiaciones. La des-excitación de sus electrones produce transiciones electrónicas que dan lugar a fenómenos de fluorescencia que son detectados por fotomultiplicadores. La producción de luz, y su posterior detección, dependerá de la energía proporcionada por las radiaciones para excitar los electrones de las sustancias centelleadoras y del tipo de des-excitación que en estas se produzca.

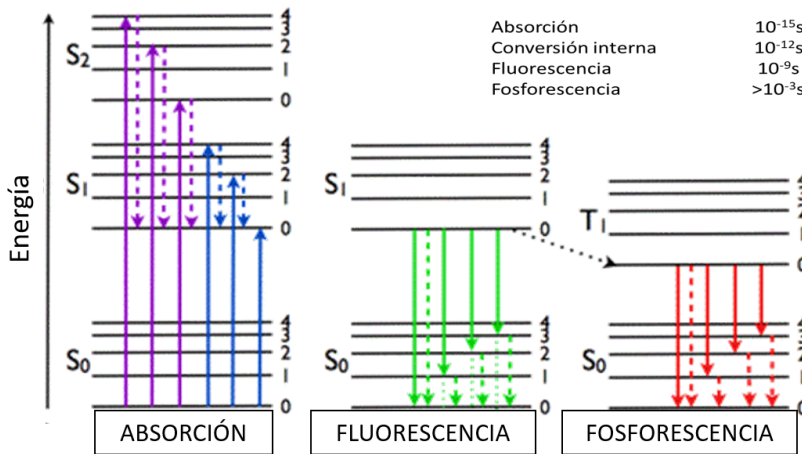


Figura 3.1: Diagrama de Jablonski. Transiciones electrónicas probables tras la excitación de un electrón.

Fuente modificada de <http://unitedscientists.org/photosynlab/2014/03/08/absorption-and-fluorescence/>

Las radiaciones beta, que son las menos energéticas, producen excitaciones de los electrones de las sustancias centelleadoras de los estados singlete fundamental (S_0) al primer estado excitado (S_1) (Ver diagrama de Jablonski en figura 3.1) cuya relajación se produce mediante fluorescencia. La eficiencia de detección para estas radiaciones es del orden de un 60% por ejemplo para el ^3H , cuya energía es tan solo de 18 keV, y eficiencias cercanas al 100% para otros isótopos más energéticos como el ^{89}Sr (1495 keV).

Las radiaciones alfa tienen una energía mucho mayor, y producen la excitación de los electrones a estados electrónicos superiores, desde donde relajan mediante procesos radiativos de fluorescencia captados por los fotomultiplicadores y fosforescencia, cuya luz no es captada por estos debido a que son procesos más lentos. Así como transiciones no radiativas como conversión interna (IC), cruzamiento entre sistemas (ISC), y principalmente mediante efectos de ionización del medio o «quenching por ionización», donde la molécula inicialmente excitada transfiere su energía a otras moléculas cercanas por colisiones. En las radiaciones alfa solo una fracción de 1/10 de la energía se emplea en excitar las moléculas del centelleador, y por tanto solo un décimo de esa energía se transforma en luz [Kes89]. Con esta pérdida de energía se podría decir que una partícula alfa de una energía como la del ^{222}Rn de 5490 keV se verá en el espectro de centelleo con una eficiencia del 100% pero a la energía que correspondería a un electrón de 549 keV.

Los efectos de ionización del medio también provocan que los espectros de centelleo de las radiaciones alfa sean mucho más anchos, con una menor resolución energética que los de las radiaciones beta.

En el caso de la detección de radiaciones gamma no se utiliza la técnica de centelleo líquido debido a que ofrecen muy baja eficiencia.

La calidad final de las medidas dependerá del sistema de detección utilizado que incluye: el líquido centelleador escogido y el equipo de medida utilizado.

3.1.1.1. El líquido centelleador

Los líquidos centelleadores deben cumplir varias funciones, por un lado han de ser capaces de disolver la muestra y al radionúclido y por otro, deben tener la capacidad de emitir luz. Por este motivo estos suelen estar compuestos por un disolvente orgánico y sustancias centelleadoras, algunos contienen además surfactantes que ayudan a disolver la muestra.

Los disolventes deben tener la capacidad de disolver al radionúclido y a las sustancias centelleadoras. Pero además deben tener electrones π deslocalizados capaces de absorber la energía producida por la radiación y transferirla a las sustancias centelleadoras. Al aumentar la densidad de electrones se aumenta la probabilidad de producción de luz. Los más utilizados han sido durante mucho tiempo el tolueno, el xileno o pseudocumeno (1,2,4-Trimetilbenceno), que proporcionan una gran eficiencia. Debido a su toxicidad se están sustituyendo por algunos más seguros, basados en DIN (Di-isopropilnaphataleno).

Las sustancias centelleadoras, como se ha introducido anteriormente, son sustancias capaces de producir luz cuando son excitadas, es decir tienen propiedades fluorescentes. Normalmente se utilizan dos sustancias centelleadoras, una sustancia primaria responsable de la primera absorción de la energía cuya producción de luz cae dentro del ultravioleta y una segunda sustancia que absorbe la energía de esta y la traslada a longitudes de onda dentro del espectro visible, donde los fotomultiplicadores son más efectivos. La sustancia centelleadora primaria más utilizada es el PPO (2,5-difenil oxazol), debido a que presenta una gran solubilidad en los disolventes normalmente utilizados y como secundario el Dimetil-POPOP (1,4-bis[2-(4-metil-5-feniloxazolil)]benceno).

Como los disolventes orgánicos no son solubles en agua, para utilizar estos líquidos con muestras acuosas, suelen añadirse detergentes como surfactantes que ayudan a disolver a los radionúclidos formando emulsiones.

3.1.1.2. Detector de centelleo líquido

La función del equipo de centelleo es detectar la luz producida en la muestra y cuantificarla. En la figura 3.2 se muestra el esquema de un detector de centelleo líquido estándar. La luz es detectada por los fotomultiplicadores, PMT en la figura, que convierten los fotones recibidos en electrones cuando estos inciden

en el fotocátodo. Los electrones producidos son entonces amplificados y acelerados hasta el ánodo a través de una serie de dínodos cargados positivamente con voltaje ascendente. El factor de amplificación de la señal con respecto a los electrones producidos en el fotocátodo del fotomultiplicador es de alrededor de 10 millones de veces. La señal producida por las partículas radiactivas produce luz en todas las direcciones, por lo que esta luz tiene que ser detectada por los dos fotomultiplicadores en el mismo espacio de tiempo. Con esta condición la luz no procedente de las radiaciones en el vial es eliminada, eliminando así la probabilidad de que la luz de fondo sea detectada, además compensa la variación de energía que pueda existir en el par de radiaciones debido a la pérdida de esta según su posición en el vial. La señal doblemente detectada se suma en una única señal de intensidad doble, en el sumador analógico, S en la figura, lo que reduce aún más la relación señal/ruido. La señal se amplifica en el amplificador, A, y es enviada al analizador multicanal, ADC, que convierte la señal analógica en digital devolviendo un espectro de los pulsos recibidos en altura recogidos en función de su intensidad. Lo que permite tener un espectro que se puede calibrar en función de su energía.

La cantidad de eventos o desintegraciones que se producen en la muestra por unidad de tiempo, DPM (Desintegraciones por minuto) se cuantifican a partir de las cuentas registradas, CPM (Cuentas por minuto). La proporcionalidad entre estas proporciona la eficiencia de detección, que se calcula en porcentaje como:

$$Ef(\%) = \frac{CPM}{DPM} 100 \quad (3.1)$$

La eficiencia de detección dependerá de la energía del isótopo a detectar, del cóctel utilizado y del estado de la muestra, ya que está sujeto a los efectos de absorción de los fotones producidos en la muestra por esta misma, que suelen ser debidos a interferentes químicos, que provocan color, precipitaciones o a la degradación de la muestra o del líquido de centelleo. Estas interferencias, llamadas efectos de «quenching», son cuantificadas por el equipo a través de un parámetro de extinción, tSIE (transformada de estándar externo), que calcula el propio equipo a través del espectro Compton que produce en el líquido de centelleo una fuente externa de ^{133}Ba . El tSIE es un valor relativo que re-

presenta la pérdida de luz en una escala de 0 (mayor extinción) a 1000 (sin extinción). Este parámetro permite realizar calibrados en eficiencia en función de los efectos de «quenching» que existan en la muestra.

Otros efectos que pueden afectar al proceso de centelleo líquido, y por lo tanto a la eficiencia de detección, son la fotoluminiscencia del propio centelleador líquido, si este ha estado expuesto a la luz ultravioleta o la quimioluminiscencia que se pueda producir en la muestra por reacciones productoras de luz indeseadas.

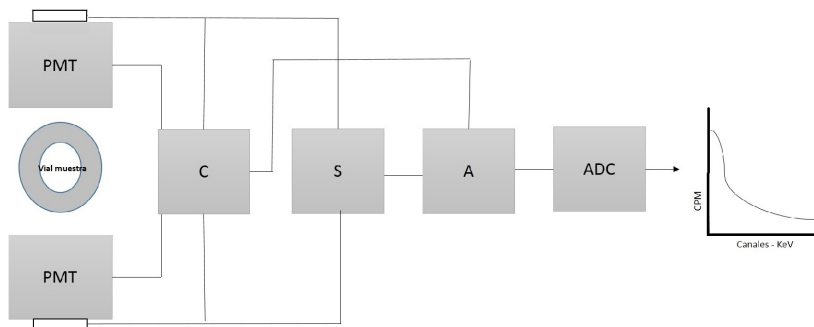


Figura 3.2: Esquema de un equipo de centelleo líquido.

Algunos detectores de centelleo líquido poseen además un discriminador de radiaciones alfa/beta (PSA) que basa su discriminación en la forma de los pulsos, separando las señales producidas por los diferentes tipos de radiaciones.

El instrumento utilizado en nuestro laboratorio es un analizador de Centelleo Líquido modelo 2810 *TR* de Perkin Elmer, con un espectrómetro de medida QuantaSmart, sin discriminador alfa/beta.

3.1.2. Centelleo líquido de radón en agua

3.1.2.1. El espectro de ^{222}Rn en centelleo líquido

Para cuantificar el radón por centello líquido se pueden aprovechar las radiaciones alfa tanto del radón como las de sus descendientes alfa de $T_{1/2}$ corto. En el espectro que se registra se pueden observar tres picos, el del propio ^{222}Rn , y los de sus descendientes ^{218}Po y ^{214}Po , como se muestra en la figura 3.3.

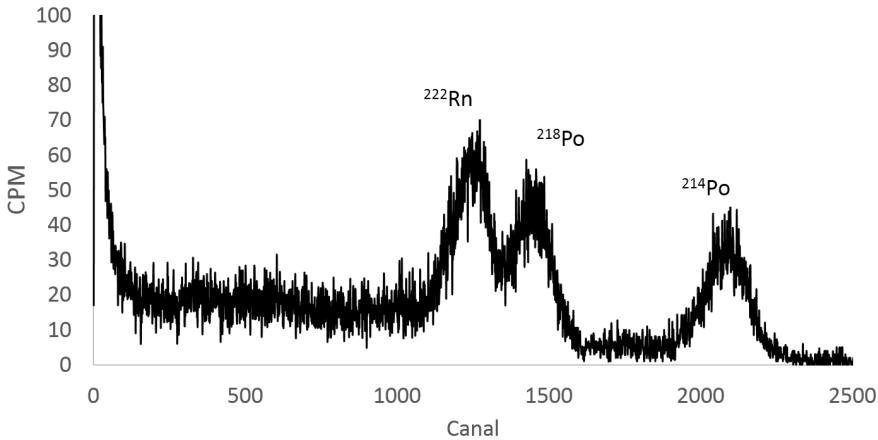


Figura 3.3: Espectro de radón en Centelleo líquido.

En el eje de las abscisas encontraremos las cuentas por minuto, CPM , y en el eje de las coordenadas, el canal, en el que se encuentra cada pulso, pudiendo corresponderse cada canal a una energía, de forma que los picos se ordenan por energías. De esta manera el primer pico se corresponde con la desintegración alfa del propio ^{222}Rn (5489 keV), que se encuentra solapado al segundo pico que pertenece a la desintegración alfa del ^{218}Po (6002 keV), y por último a mayor energía, el pico que corresponde al ^{214}Po (7687 keV), que es menos intenso, debido a la rápida desintegración de este ($T_{1/2} = 165$ ns).

Dado que la eficiencia de detección de radiaciones alfa en centelleo líquido, tal y como se ha explicado, es prácticamente del 100 % el espectro proporcionado por el radón y sus descendientes tendrá una eficiencia efectiva cercana al 300 %.

3.1.2.2. Líquido de centelleo para la determinación de radón en agua

El centelleo líquido para la determinación de radón en agua presenta una gran ventaja frente a la determinación de otros radionúclidos. El gas radón tiene una gran solubilidad en sustancias orgánicas, por lo que puede ser extraído de estas sin necesidad de disolver toda la muestra en líquido centelleador [Pri77, Kes89]. La preferencia del radón por la fase orgánica se debe a su solubilidad en los diferentes compuestos, que vendrá definida por su constante de Ostwald o su coeficiente de partición entre el agua y el disolvente utilizado. Esta constante de partición que define la preferencia de paso del radón desde el agua hasta el líquido centelleador es la base del método de determinación de radón por métodos de centelleo líquido [Can00]. Tal es así que muchos de los métodos presentes en la bibliografía consisten en la extracción del radón de grandes volúmenes de agua (500 – 900 mL) mediante la adición y posterior extracción del líquido centelleador en ellas [Mur79, Sch12]).

En este trabajo se ha utilizado un líquido comercial de los llamados «seguros» que contiene como disolvente DIN (2,6-Di-isopropilnaftalina), Ultima Gold F de la marca Perkin Elmer. Este disolvente no es miscible con sustancias acuosas y su constante de partición para el radón, medida experimentalmente por Cantaloub [Can00], es de $32,4 \pm 1,7$, inferior a la del tolueno de $43,6 \pm 1,5$, pero que ha demostrado tener una gran eficiencia

Además de la capacidad extractora de radón que tenga el líquido centelleador, y de su capacidad de producir luz, una de las características más importantes que deberá tener para la determinación de radón será su resistencia en el tiempo sin que se degrade en presencia de la muestra y/o patrón, debido a que los patrones han de prepararse con disoluciones de radio y habrá que esperar el alcance del equilibrio secular entre este y sus descendientes para poder llevar a cabo un calibrado durante un mínimo de 21-28 días.

Para comprobar el buen funcionamiento de este el líquido de centelleo, se ha estudiado su extinción química, la influencia en la eficiencia de detección en las muestras y su resistencia química en el tiempo.

Para ello se prepararon viales de 20 mL con una relación 1:1 de volumen de patrón y líquido de centelleo, tal y como se indica en la norma UNE de medida de radón en agua por centelleo líquido [ISO15]. Durante el tiempo en el que se esperaba el equilibrio se fueron midiendo periódicamente.

La tabla 3.1 muestra la variación del parámetro de extinción, tSIE, en los patrones a lo largo del tiempo, así como las eficiencias calculadas mediante la ecuación 3.1. Como se puede observar la extinción se mantiene prácticamente constante y la pérdida observada no provoca ninguna pérdida de eficiencia.

Tabla 3.1: Variación del parámetro de extinción en los patrones de ^{226}Ra con el tiempo.

Días	CPM	tSIE	Ef (%)
2	31.57	990	-
21	67.28	955	267
26	66.84	961	267
30	69.09	936	273
37	69.90	923	279

Para realizar un estudio sobre cuanto afectaría la variación del parámetro de extinción a la eficiencia se varió la extinción de un patrón de ^{226}Ra añadiendo un agente extintor, CCl_4 , en cantidades crecientes a un patrón. Para ello se prepararon inicialmente 4 patrones equivalentes y se midieron sin el agente extintor para comprobar que tenían extinciones (tSIE) y eficiencias similares. Los espectros registrados son los que se muestran en la figura 3.4, con sus eficiencias y los parámetros de extinción asociados a estas, como se ve muy similares ambos para los cuatro patrones preparados y eficiencias entre el 265 % y el 276 %.

Una vez comprobada la similitud de los patrones, se añadió a tres de ellos volúmenes crecientes de CCl_4 . P2.1 no contiene CCl_4 , a P2.2 se le añadieron 7 μL , a P.3 15 μL , y a P2.4 20 μL y se comprobó la variación de la eficiencia de detección con el parámetro tSIE.

Los espectros proporcionados, figura 3.5, muestran que el agente extintor produce un desplazamiento de los picos hacia menores energías pero todos ellos se encuentran entre los canales 500 – 2500, que como se verá en el apartado § 3.1.3.3 es la ventana escogida para realizar los análisis, por lo que las eficiencias proporcionadas siguen siendo similares, a pesar de existir mucha variación en el parámetro de extinción.

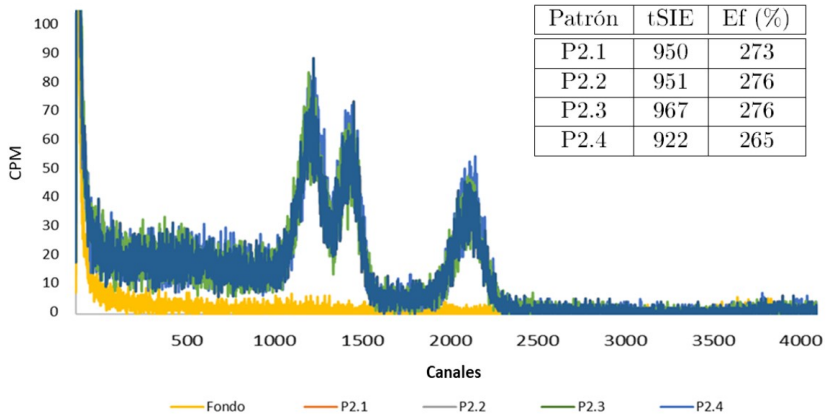


Figura 3.4: Espectro de patrones sin agente extintor.

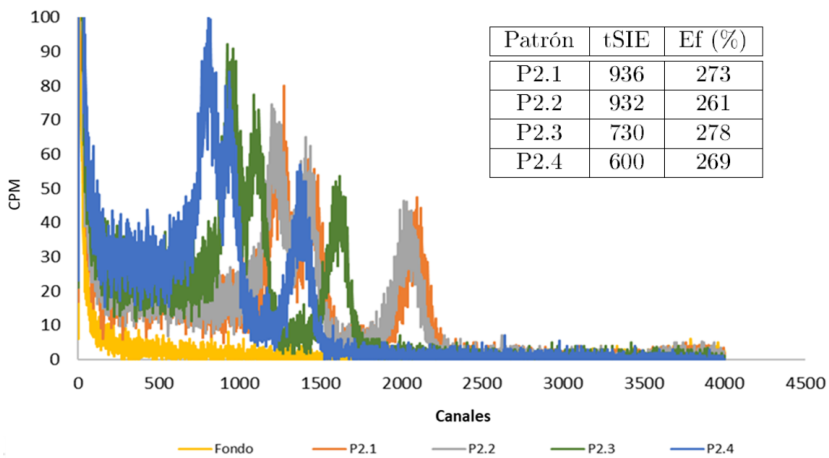


Figura 3.5: Desplazamiento de los pico en el espectro con la extinción.

3.1.3. Puesta a punto del método de centelleo líquido en el laboratorio

El proceso de centelleo líquido para la determinación de radón en agua es un proceso que, a pesar de su sencillez, requiere un riguroso tratamiento debido a la alta probabilidad que existe de perder el radón en las muestras. En el diagrama que se representa en la figura 3.6 se han plasmado todas las etapas del proceso, en cuadros coloreados, con las actividades clave dentro de cada una de las etapas, en cuadros sin relleno, que son estudiadas en los siguientes apartados.

3.1.3.1. Muestreo de agua para análisis de radón

La etapa del muestreo y el transporte, aunque sencilla, es uno de los pasos más determinantes en el análisis de radón y su mayor fuente de incertidumbre, debido a su característica de ser un gas.

Para recoger el agua, existen diferentes métodos que se describen en algunas normas ISO, [ISO15], si esta procede de un grifo se deja el agua correr 2 – 3 minutos con un gran caudal y alta presión para eliminar el gas que pueda contener, después se disminuye la presión del agua y se deja correr unos minutos más (1 – 2 minutos), se llena el frasco de una forma lenta para que no se generen turbulencias ni burbujas, pero tampoco demasiado para que no se escape el gas radón durante el muestreo. Si, por el contrario, el agua que se recoge es de río, pantano, o aguas superficiales el frasco se sumerge en el agua, se enjuaga con esta misma un par de veces, y se llena sumergido, donde se pone el tapón, evitando que la muestra entre en contacto con el aire.

La formación de burbujas es muy habitual e indeseada, ya que la preferencia del radón por la fase gaseosa hará que este se vaya a la burbuja con su consiguiente pérdida, por este motivo hay que comprobar visualmente que no existan burbujas, y de existir alguna se debe volver a repetir el muestreo.

El transporte al laboratorio debe ser lo más rápido posible y con las muestras refrigeradas



Figura 3.6: Diagrama de flujo del proceso de determinación de radón en agua por centelleo líquido.

Comparación de envases de muestreo y transporte para radón

En este trabajo, se ha recogido el agua con dos tipos de envases, por un lado un frasco de 1L de doble tapa, que es el que se utiliza para el análisis por espectrometría gamma y que, como se explicará posteriormente, se realiza en el propio frasco sin ningún tipo de preparación o trasvase, y por otro lado, unos frascos de cristal opaco, que son los frascos más acordes a la toma de muestra y medida de radón según las normas y la bibliografía [ISO15][Job19].

En la tabla 3.2 se muestran las variaciones en la actividad para una muestra recogida por triplicado en frascos de cristal y en frascos de plástico, y almacenada 1, 2 y 3 días en un refrigerador. En ella se puede ver que la pérdida de radón en tan solo tres días es prácticamente nula en los dos tipos de envase. Si tenemos en cuenta la incertidumbre del método, no se observan diferencias significativas.

Tabla 3.2: Diferencia de actividad entre muestras de agua tomadas en envases de plástico y cristal.

Días	Envase de cristal $^{222}\text{Rn}(\text{Bq/L})$	Envase de plástico $^{222}\text{Rn}(\text{Bq/L})$
1	267 ± 30	262 ± 34
2	267 ± 48	255 ± 49
3	263 ± 60	262 ± 60

3.1.3.2. Preparación de las muestras y patrones para la medida

El procedimiento de preparación de muestras para centelleo líquido suele ser sencillo, ya que consiste en mezclar en un vial la muestra con el líquido centelleador. Pero en el caso del radón, este es un procedimiento delicado, debido, una vez más, a la probabilidad de perder radón en el proceso.

Para la preparación de las muestras se coloca en un vial de centelleo el volumen necesario de líquido centelleador. La muestra de agua se extrae del envase que la contenga y se introduce en el vial de forma que el extremo de la pipeta o jeringa con la que hayamos tomado la muestra quede por debajo del líquido centelleador, para evitar la pérdida de radón al transferirla. El fondo

se prepara del mismo modo que las muestras, pero con agua destilada que ha sido previamente hervida y agitada para eliminar el posible radón que pudiera contener. La mezcla debe agitarse para favorecer el paso del radón desde el agua hasta el líquido centellador.

Una vez preparadas tanto las muestras como el fondo, hay que esperar un mínimo de tres horas dentro del equipo para que se alcance el equilibrio entre el ^{222}Rn , ^{214}Po y ^{218}Po .

Comparación de la extracción de la muestra con jeringa o pipeta de vidrio

Las normas de medida de radón en agua, como la [ISO15], dictan que la extracción de la muestra de agua del envase que la contiene debe realizarse con una jeringa de cristal e introducirla en el vial con ella, para evitar así pérdidas de radón al transvasar la muestra. Sin embargo, la experiencia en el laboratorio nos ha demostrado que al intentar sacar la muestra de agua con una jeringa se generan turbulencias su interior, por lo que se decidió comprobar la pérdida de radón que se produciría si esta muestra en lugar de con la jeringa se tomara con una pipeta de vidrio, sin burbuja central. La burbuja central de las pipetas aforadas contribuiría a la pérdida de radón en la extracción de la muestra ya que al llegar a ella se generan turbulencias.

Para esta comprobación se tomaron 6 muestra de un mismo agua natural. Tres de ellas fueron preparadas con un jeringa y las otras tres con una pipeta, realizando la extracción del agua solo una vez en cada envase para minimizar las diferencias que pudieran darse por tener el envase abierto durante la preparación consecutiva en el caso de las muestras preparadas con pipeta, o por el volumen de aire que dejaría al extraerse agua con la jeringa.

La concentración media de las muestras preparadas de ambas formas se representa en la tabla 3.3 junto con su desviación estadística. Como se puede ver, las diferencias de actividad son mínimas, lo que indica que no existe una pérdida de radón significativa. Las incertidumbre debida al muestreo es mayor que la debida a esta extracción. Por este motivo se decidió, por facilidad, preparar la muestras con una pipeta, siempre realizando la operación de abrir y extraer la muestra de la forma más rápida posible.

Tabla 3.3: Diferencias entre la preparación de la muestra con jeringa y con pipeta de vidrio.

$^{222}\text{Rn}(\text{Bq/L})$	
Jeringa	233 ± 12
Pipeta	247 ± 3

3.1.3.3. Medida de las muestras

La medida de las muestras una vez preparadas se realiza introduciendo directamente los viales en el equipo. Los parámetros a optimizar en esta etapa serán la elección de la ventana de energía y el tiempo de medida de la muestra.

Selección de la ventana de energía

Para escoger la ventana de energía, se ha analizado la eficiencia efectiva que proporcionan tres patrones de actividad creciente (P1, P2, P3) en diferentes intervalos del espectro de la siguiente manera:

- a) 0-4000 canales: Todo el espectro.
- b) 500-1500 canales: Los picos del ^{222}Rn y el ^{218}Po solapados, teniendo en cuenta que debería tener una eficiencia efectiva doble.
- c) 1000-2500 canales: Los picos de los tres isótopos teniendo en cuenta que sería una eficiencia efectiva triple.
- d) 500-2500 canales: Los picos de los tres isótopos tomando un intervalo de menor energía para asegurarnos de coger todo el pico independientemente de la extinción. Cuya eficiencia efectiva también sería triple.

Las eficiencias encontradas son las que se muestran en la tabla 3.4.

Como es lógico, si se escoge toda la ventana de medida, caso a) la eficiencia obtenida será más alta que en el resto de los casos, sin embargo podrían existir interferencias de isótopos emisores beta que existan en la muestra o que hayan crecido en el patrón de radio que utilizemos para calibrar. Intentar ser más exactos escogiendo solo picos, supone eficiencias más bajas, tanto en el caso b)

como en el c). El caso d) es la situación ideal para asegurar la máxima eficiencia posible y evitar interferencias, así como asegurarnos de escoger todos los picos si se produjeran desplazamientos del espectro por efectos de extinción, como se explicó en el apartado sobre el líquido centelleador utilizado §3.1.2.2.

Tabla 3.4: Eficiencias (%) en los diferentes intervalos de ventana.

	<i>a</i>	<i>b</i>	<i>c</i>	<i>d</i>
Canales	(0 – 2000)	(500 – 1500)	(1000 – 2500)	(500 – 2500)
<i>P1</i>	378	245	247	323
<i>P2</i>	360	191	218	275
<i>P3</i>	349	187	213	267
<i>Media</i>	362 ± 15	208 ± 32	226 ± 18	288 ± 30

Tiempo de medida

En las técnicas de medida por centelleo líquido el tiempo de medida se suele adaptar a las actividades mínimas detectables (AMD) que se quieran alcanzar, ya que cuanto más tiempo se está midiendo mayor será la estadística de recuento, pero en el caso del radón, escoger un elevado tiempo de medida supone un problema debido a su rápida desintegración.

La actividad mínima detectable se calculará según la definición de Currie [Llo68] para nuestras muestras como:

$$AMD(\text{Bq/L}) = \frac{L_D}{V \cdot t \cdot \varepsilon}$$

Donde V es el volumen de muestra añadida, t , el tiempo de medida, L_D es el límite de detección calculado como $L_D = 2,71 + 4,65 \cdot \sqrt{C_f}$, siendo C_f las cuentas del fondo y ε la eficiencia de detección.

Para evaluar la eficiencia de detección se ha evaluado la eficiencia que se obtiene a diferentes actividades de concentración y se ha estimado la eficiencia cercana al límite de detección a partir de 20 fondos tomados a lo largo de un año, obteniéndose un $251,2 \pm 0,6$ %, que será la eficiencia utilizada para calcular el AMD.

Dependiendo del tiempo que se mida se obtienen las AMD que se muestran en la tabla 3.5. Con tan solo 100 minutos se alcanza una actividad mínima detectable de 0,66 Bq/L. Como la diferencia no es muy grande al aumentar el tiempo, y a esas actividades la incertidumbre de la actividad es elevada, se ha considerado que con medir 100 minutos es suficiente, además de evitar incertidumbres mayores por desintegración y poder medir un mayor número de muestras en menos tiempo.

Tabla 3.5: Actividad mínima detectable (AMD) en función del tiempo de medida.

Tiempo(min)	100	200	300	400	500
AMD (Bq/L)	$0,66 \pm 0,03$	$0,46 \pm 0,02$	$0,38 \pm 0,02$	$0,33 \pm 0,01$	$0,29 \pm 0,01$

La actividad mínima detectable debe ser corregida por el tiempo de decaimiento de la muestra desde su recogida, ya que cuando hablamos del AMD se tiene en cuenta solamente el proceso de medida pero, se ha de tener en cuenta la disminución de la actividad desde la recogida de la muestra. En un solo día este AMD aumentaría a 0,80 Bq/L, en dos días a 0,95 Bq/L y con tres se encontraría por encima de 1,14 Bq/L

Estas AMD se encuentra muy por debajo de los límites establecidos para aguas de consumo en la legislación española (100 Bq/L, AMD 10 Bq/L en R.D. 314/16 [RD316]), por lo que para esta tarea 100 minutos también sería un tiempo suficiente.

3.1.3.4. Calibrado y Cálculo de la actividad

Para realizar un calibrado que permita calcular la actividad en las muestras se preparan patrones de actividad creciente del mismo modo que son preparadas las muestras.

En un vial con 10 mL de líquido de centelleo se agrega la cantidad de patrón de ^{226}Ra necesaria (dependiendo del patrón, el calibrado ha de cubrir aproximadamente desde los 5 – 10 hasta los 800 – 1000 Bq/L. Se añade el volumen apropiado de agua destilada, previamente hervida y agitada para eliminar el radón que pueda contener, hasta completar 20 mL de volumen en total.

Los viales patrón así preparados se etiquetan y sellan, y se dejan en reposo entre 21 – 28 días hasta que se alcance el equilibrio secular. Para realizar correctamente el calibrado se deberá estar seguro de que estos han alcanzado el equilibrio. El espectro recogido durante su crecimiento se puede ver en la figura 3.7.

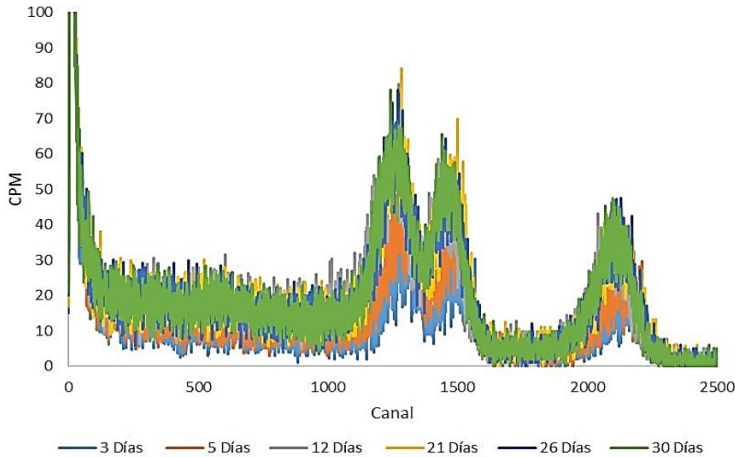


Figura 3.7: Espectro LSC de un patrón de ^{222}Rn durante su crecimiento.

Si se observa el crecimiento de un patrón de una cierta actividad con el tiempo, obtenemos la curva que se representa en la figura 3.8, del tipo $y = a \cdot (1 - e^{-b \cdot t})$, Donde $a = 36649$ cuentas y b , que correspondería a la constante de desintegración del radón, es $b = 0,23$. La constante de desintegración del radón es $0,18 \text{ días}^{-1}$. La diferencia encontrada puede ser debida a la pérdida de radón en el envase durante el tiempo de espera. Cuando se preparan los patrones estos se dejan en una nevera hasta que alcancen el equilibrio, pero para realizar este estudio los patrones han sido sacados y puestos a temperatura ambiente tantas veces como se han querido medir, lo que puede llevar a pérdidas en el vial. Se observa en la figura que a partir del día 21 las cuentas son constantes, es decir, se ha establecido el equilibrio, por lo que se podrán medir los patrones de calibrado a partir de este día. El criterio que se ha seguido en el laboratorio para asegurar el equilibrio es que la diferencia entre las cuentas encontradas en dos medidas realizadas con al menos tres días de separación sea inferior 10%.

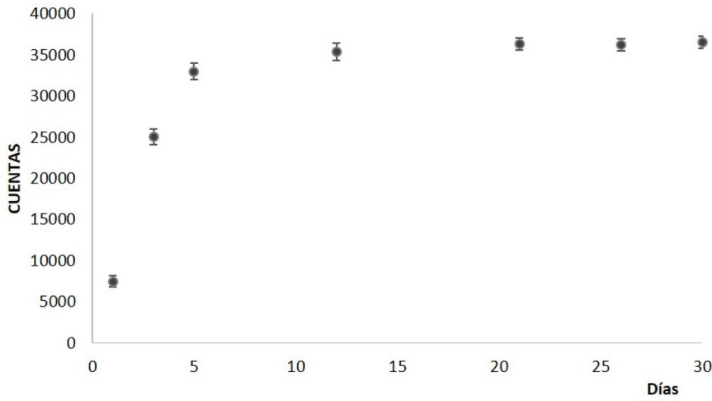


Figura 3.8: Curva de crecimiento de un patrón de ^{222}Rn .

Con los patrones medidos se efectúa un ajuste en eficiencia con los pares de valores *Actividad/CPM*, que nos da una recta del tipo $y = a + bx$, donde y es la actividad y b , la pendiente de la recta, como la que se muestra en la figura 3.9. El hecho de que el coeficiente de correlación sea cercano a la unidad indica que no existe ningún problema con la variación en la eficiencia de la detección.

La actividad se calcula interpolando en el calibrado realizado como:

$$A(^{222}\text{Rn}) = a + b \cdot \text{CPM}_{\text{netas}} \quad (3.2)$$

siendo $\text{CPM}_{\text{netas}} = \text{CPM}_{\text{muestra}} - \text{CPM}_{\text{fondo}}$ y a y b los parámetros del calibrado. La incertidumbre de la actividad ($UA(^{222}\text{Rn})$), vendrá dada por:

$$UA(^{222}\text{Rn}) = \sqrt{U_{\text{calibrado}}^2 + U_{\text{CPM}_{\text{netas}}}^2 + U_{\text{volumen}}^2} \quad (3.3)$$

siendo la del calibrado, $U_{\text{calibrado}}$:

$$U_{\text{calibrado}} = \sqrt{U_{\text{patrón}}^2 + U_{\text{ajuste}}^2} \quad (3.4)$$

y U_{volumen} , la incertidumbre del volumen, que depende del instrumento con el que preparemos la muestra.

$UCPM_{\text{netas}}$, la incertidumbre estadística de las cuentas netas.

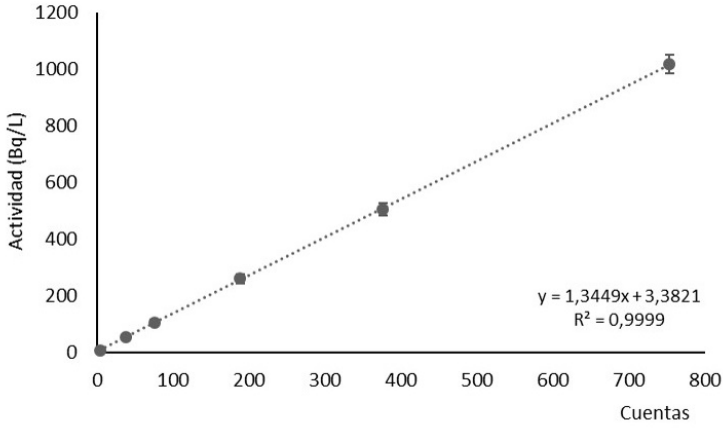


Figura 3.9: Calibrado de radón en Centelleo.

La actividad se dará siempre corregida a fecha y hora de recogida de la muestra como:

$$A(^{222}\text{Rn})_{tm} = A(^{222}\text{Rn})_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} \quad (3.5)$$

Siendo $A(^{222}\text{Rn})_0$ la actividad calculada anteriormente, λ , la constante de desintegración del ^{222}Rn , y Δt el tiempo transcurrido entre el análisis y la recogida de la muestra.

La incertidumbre de la actividad corregida por el tiempo vendrá por tanto dada por:

$$UA(^{222}\text{Rn})_{tm} = e^{\frac{\ln(2) \cdot \Delta t}{T_{1/2}}} \sqrt{(UA(^{222}\text{Rn})_0)^2 + \frac{((A(^{222}\text{Rn})_0)^2 \cdot \ln(2) \cdot \Delta t)^2}{(T_{1/2})^4} \cdot UT_{1/2}^2} \quad (3.6)$$

Siendo Δt el tiempo transcurrido entre el análisis y la recogida de la muestra, $T_{1/2}$ el período de semidesintegración del radón, $UT_{1/2}$, la incertidumbre del período de semidesintegración del radón, $A(^{222}\text{Rn})_0$ la actividad calculada sin corregir por desintegración y $UA(^{222}\text{Rn})_0$ su incertidumbre.

3.1.4. Validación del método

Para validar el método, puesto que no se dispone de muestras certificadas, que por otro lado son difíciles de conseguir y sobre todo no se pueden mantener para realizar sobre ellas tantos análisis como se desee, se ha participado en diferentes intercomparaciones, algunas de ellas con resultados publicados [Cel18, Job20]. Como estas suelen tener altas actividades, ya que de otra forma serían imposibles de realizar, se han preparado muestras artificiales de bajas actividades.

Las muestras artificiales se han preparado en recipientes como los que se utilizan para el muestreo. Se han añadido cantidades conocidas de patrón de ^{226}Ra y completado con agua hasta llenar el recipiente por completo. Con este método se han preparado tres muestras artificiales, una con una actividad de 150 Bq/L, y dos con una baja actividad de alrededor de 3 Bq/L, una en condiciones normales, agua y patrón, y a la otra se le ha añadido 1 mL de ácido nítrico al 65 %, para variar su extinción. Pasados 30 días de la preparación fueron extraídas como las muestras reales, preparadas con el líquido de centelleo y se midieron e interpolaron en el calibrado correspondiente.

Para evaluar la exactitud, se ha calculado el sesgo como la diferencia porcentual entre el valor calculado y la concentración referencia de todas ellas. La precisión se ha evaluado a través de desviación estándar relativa (*RSD* %) para tres repeticiones de la medida, excepto para la etiquetada como Inter 1, de la que solo se realizó una medida. Los resultados obtenidos se muestran en la tabla 3.6.

La exactitud y la precisión de la técnica son inferiores para actividades bajas, que se encuentran cerca del límite de detección, aún así los valores de sesgo y coeficiente de variación que obtenemos son aceptables para esos niveles de actividad. La muestra acidificada, cuya extinción es mucho mayor, ofrece el mismo valor de actividad, así como de sesgo y coeficiente de variación que la no acidificada, por lo que podemos concluir que definitivamente la extinción de las muestras no influye en el cálculo de la actividad. Para actividades altas, de más de 10 veces el límite de detección, la técnica es exacta, ya que el sesgo obtenido está alrededor del 15 % para bajas actividades y entre el 0,4 y 9,0 % para altas actividades, y precisa, con un *RSD* obtenido de un 1,2 % como máximo.

Tabla 3.6: Parámetros de Validación en la determinación de ^{226}Rn mediante LSC.

ACTIVIDAD	Muestra	Actividad (Bq/L)	Actividad Medida (Bq/L)	Sesgo (%)	RSD (%)
Bajas	Preparada	$3,66 \pm 0,13$	$3,18 \pm 0,73$	13	9
	Preparada (+ HNO_3)	$3,69 \pm 0,13$	$3,18 \pm 0,73$	14	9
Altas	Preparada	155 ± 5	154 ± 3	0,4	2
	Inter 1	112 ± 22	120 ± 20	7	—
	Inter 2	320 ± 61	350 ± 90	9	0,5
	Inter 3	91 ± 18	94 ± 6	3	0,15
	Inter 4	305 ± 33	320 ± 20	5	1,2

3.2. Espectrometría Gamma

La espectrometría gamma de bajo fondo es muy utilizada para la determinación de radionúclidos ambientales debido a que es capaz de detectar pequeñas actividades de emisores gamma. Su principio de funcionamiento es similar al del centelleo líquido, y se basa en la interacción de la radiación con un cristal centelleador, o productor de luz, la diferencia es que en este caso el centelleador es el cristal que integra el detector, por lo que las características de la medida vienen determinadas por las propiedades de este.

A lo largo de los años se han utilizado diferentes cristales centelleadores que han sido sustituidos por materiales semiconductores. En el apartado sobre la determinación de radón con canister de carbón activo § 2.3.1, se nombró, aunque no se describió, el detector gamma con cristal centelleador de NaI que utilizábamos para su medida. En este caso se ha utilizado un equipo detector semiconductor de Germanio hiperpuro, en el que la energía de la radiación se emplea en producir pares electron-hueco.

3.2.1. Principios de espectrometría gamma con detector semiconductor

El principio de funcionamiento de la espectrometría gamma con detector semiconductor se basa en las propiedades del cristal detector, y en su interacción con las radiaciones que recibe de la muestra.

La radiación gama es radiación electromagnética de gran energía en forma de fotones. Cuando esta radiación incide en el cristal se crean pares de electrón-hueco, es decir los electrones fluyen en una dirección y las vacantes en la otra. La interacción de estos fotones con el semiconductor puede ser:

1) Efecto Compton, la energía del fotón incidente provoca que el electrón sea dispersado en el material, produciendo un fotón de menor energía. La probabilidad de este suceso aumenta con la energía del fotón.

2) Efecto fotoeléctrico, si la energía del fotón incidente en el cristal es totalmente absorbida por el electrón, su vacante, o hueco, se ocupa por captura electrónica de algún electrón del medio y tras el reordenamiento electrónico de la corteza del átomo se produce la emisión de radiación X característica. Es el efecto predominante a muy bajas energías.

3) Creación de pares. Si la energía del fotón incidente es mayor de 1022 keV, que es el doble de la energía del electrón en reposo, se puede dar el proceso de producción de pares electrón-positrón. Debido a que el positrón se aniquila después de desplazarse por el medio, se producen dos fotones de aniquilación de 511 keV. La probabilidad de la producción de pares es mayor cuanto mayor sea el número atómico del material detector.

La señal eléctrica producida se transforma en pulsos electrónicos, cuya amplitud es dependiente del voltaje y de la energía de la radiación, con ayuda de un analizador multicanal, MCA. De esta forma se obtiene un espectro donde cada emisión de cada radionúclido se encuentra recogida en función de su energía. El funcionamiento del material semiconductor requiere que este se encuentre a baja temperatura, para lo que se suelen emplear criostatos de nitrógeno líquido.

En el laboratorio la espectrometría gamma se lleva a cabo con un detector de Germanio hiperpuro, HPGe, que tiene una gran eficiencia energética, el cual nos permite separar los picos de los espectros con elevada facilidad, ya que tiene una gran resolución. El modelo utilizado es un GX 7020-7500SL marca CANBERRA y el tipo de cristal de Ge (n/p/C), donde n/p es el tipo de unión semiconductor y C hace referencia a la ventana de fibra de carbono. El detector se enfría por medio de un criostato con nitrógeno líquido para evitar la excitación térmica de los electrones. El voltaje de polarización es de 4500 V. El analizador multicanal es de marca y modelo CANBERRA DSA-LX y el software de adquisición de espectros que se utiliza es el Genie 2000, aunque el análisis se realiza con GammaVision, para lo cual hay que utilizar un software de cambio de formato a formato .chn proporcionado por el suministrador para esta labor. Este equipo de gran eficiencia (70% para el ^{60}Co), y resolución desde (900 MeV para los 22 keV hasta 2 keV para 1333 keV) nos permite realizar análisis gamma entre 3 keV y 10 MeV, aunque el interés en radiactividad ambiental es en el rango 40 – 2000 keV.

Para disminuir el fondo el detector, este está recubierto por un blindaje de hierro de 12 cm de grosor que elimina la radiación del exterior en un elevado porcentaje y permite analizar muestras de baja actividad.

3.2.2. Espectrometría gamma del radón

La determinación de ^{222}Rn en agua se puede llevar a cabo por espectrometría gamma teniendo en cuenta las energías de emisión gamma de sus descendientes ^{214}Pb y ^{214}Bi y asumiendo entre todos ellos un equilibrio secular. Las actividades de estos isótopos se corresponden con las energías que se muestran en la tabla 3.7, junto con sus probabilidades de emisión y los posibles interferencias que podrían encontrarse en las señales de estos.

Tabla 3.7: Radiaciones utilizadas para la determinación de ^{222}Rn por espectrometría gamma.

Isótopo	Desintegraciones	Energía (keV)	Probabilidad de emisión (%)	Interferencias
^{214}Bi	$^{214}\text{Bi} - A$	609.31	46.1	^{218}Rn (0,1 %)
	$^{214}\text{Bi} - B$	1764.49	15.4	-
	$^{214}\text{Bi} - C$	1120.29	15.1	-
^{214}Pb	$^{214}\text{Pb} - A$	351.93	37.6	^{211}Bi (12,1 %)
	$^{214}\text{Pb} - B$	295.22	19.3	-

Las emisiones más intensas de ^{214}Pb (351,93 keV) y ^{214}Bi (609,31 keV) pueden estar interferidos en una pequeña parte por el ^{218}Rn y el ^{211}Bi , por lo que hemos añadido emisiones menos intensas al análisis para comprobar la existencia o no de interferencias en estas señales. Además tanto el ^{214}Bi como el ^{214}Pb , son isótopos abundantes en el fondo.

En las figuras 3.10 y 3.11 se representan un espectro gamma de una muestra de agua con los fotopicos que utilizamos para el análisis de radón medida durante 80000 s y del fondo, que es la respuesta del detector en ausencia de muestra, medido durante 600000 s.

En el espectro de fondo siempre se tendrá, aunque sean bajas actividades, un fondo natural que incluye a los isótopos ^{214}Pb y ^{214}Bi , debidas a los materiales del detector, del blindaje o del ambiente, que pueden ser más o menos constantes, pero además existen contribuciones del radón ambiental en la sala de medida, pues aunque en el laboratorio las concentraciones de radón en el aire sean muy bajas, inferiores a 20 Bq/m^3 , y el detector gamma se encuentre blindado siempre habrá algo de radón y/o descendientes de este en la cavi-

dad del detector, cuya contribución será variable . Estas variaciones pueden contribuir significativamente a las medidas en el caso de bajas actividades.

Para evaluar esta contribución, y el error que esta podría llegar a introducir en la determinación de radón en la muestra, hemos analizado los fondos de todo un año en el detector, y calculado la actividad que existe en la cavidad y la variación de esta en función de cada uno de los fotopicos que utilizamos. Los resultados se presentan en la tabla 3.8, donde vemos que no existen grandes variaciones.

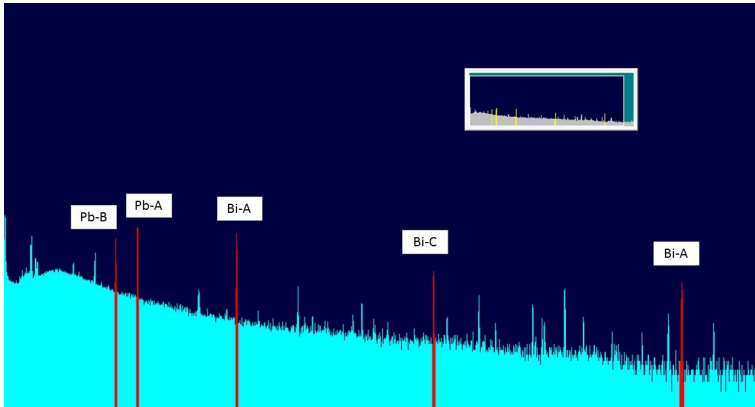


Figura 3.10: Espectro gamma de una muestra de agua medida 80000 s.

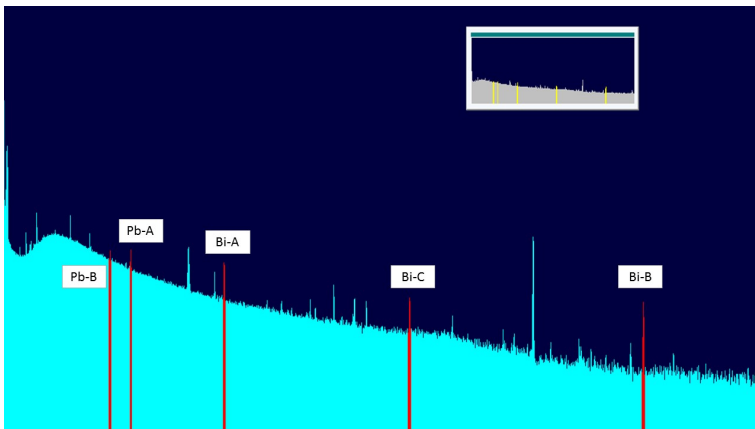


Figura 3.11: Espectro gamma del fondo del detector medido durante $1 \cdot 10^6$ s.

Tabla 3.8: Descendientes de radón en la cavidad del detector gamma en ausencia de muestra.

<i>Fotopico</i>	<i>Actividad (Bq)</i>	<i>Variación anual (%)</i>
$^{214}\text{Bi} - A$	1,5	14
$^{214}\text{Bi} - B$	4,7	7
$^{214}\text{Bi} - C$	2,5	18
$^{214}\text{Pb} - A$	1,2	8
$^{214}\text{Pb} - B$	1,2	15

3.2.2.1. Calibrado en energía y eficiencia

Para identificar los picos deseados y cuantificar la actividad de estos se deberá tener el detector calibrado en energía y en eficiencia.

Calibrado en energía

El calibrado en energía consiste en asociar a cada canal la energía correspondiente. De forma que podamos identificar cada pico con su isótopo correspondiente. Este calibrado suele realizarse directamente sobre el espectro de la muestra, el fondo o el patrón, identificando algunos de los picos que siempre están presentes en todos ellos, ya que provienen del fondo o del propio blindaje, con ayuda de las librerías del software de análisis. Este calibrado en energía crea una recta energía/canal con la que podremos identificar los picos.

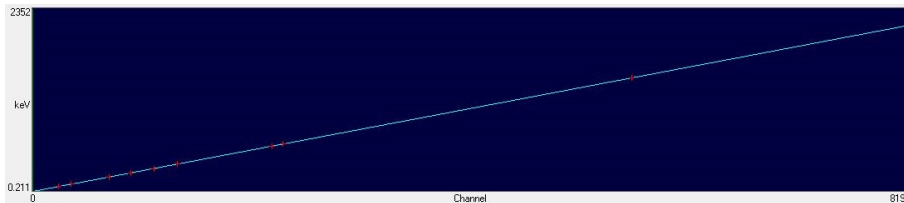


Figura 3.12: Calibrado en energía de una muestra.

Calibrado en eficiencia

El calibrado en eficiencia de recuento permite cuantificar la concentración de cada isótopo a partir de las cuentas que se encuentren en el espectro a la energía de dicho isótopo, siempre que este esté previamente calibrado en energía. La curva que se obtiene representa como varía la eficiencia en función de la energía. Para realizar un calibrado en eficiencia es imprescindible tener en cuenta:

1) La geometría en la que se medirán las muestras. La geometría viene determinada por el tipo de envase que se utilice para la medida de las muestras, que determina la distribución espacial de las radiaciones gamma emitidas y la energía en el detector.

2) La densidad y/o tipo de muestra. La calibración en eficiencia para cada tipo de muestra, o matriz, es diferente, debido a los fenómenos de auto absorción que se producen en esta, así no será igual la autoabsorción que se produce en una muestra de suelo, mucho más densa, que la que se produce en una muestra de agua.

3) El intervalo energético en el que se calibra en eficiencia debe cubrir las energías de los isótopos que se quieren analizar. Para ello hay que elegir un multipatrón que posea los isótopos suficientes que nos permitan realizar el calibrado en una amplio rango de energías.

Para realizar la calibración en eficiencia para la determinación de radón en agua siguiendo todos estos puntos, se ha preparado un patrón en el mismo envase de doble tapa y con la misma cantidad de agua, 1 L, que tendrán las muestras. El patrón utilizado en este laboratorio es un patrón certificado por el NPL (National Physical Laboratory, UK) constituido por los isótopos ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{51}Cr , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{65}Zn , ^{60}Co , y ^{88}Y , con los que se cubre el rango energético de entre 59 y 1836 keV.

El patrón así preparado se mide durante un tiempo que nos permita tener suficiente estadística. La eficiencia en cada punto de energía se calcula para cada isótopo como:

$$\varepsilon_i = \frac{(N - Nf)}{t \cdot A_i \cdot P_{\gamma i}} \cdot e^{\frac{Ln(2) \cdot \Delta t}{T_{1/2, i}}} \quad (3.7)$$

Donde N es el número de cuentas del fotopico de interés en la muestra

y N_f las cuentas de este fotopico en el fondo. A es la actividad del patrón utilizado del isótopo que genera el fotopico, Δt el tiempo transcurrido desde el certificado de este patrón. $P_{\gamma i}$ la propabilidad de emisión del isótopo, $T_{1/2,i}$ el período de semidesintegración de este y t el tiempo de medida.

El calibrado en energía y eficiencia para la geometría dada se lleva a cabo con el programa GammaVision (ORTEC), que proporciona una curva en eficiencias dependiente de la energía como se muestra en la figura 3.13 a partir de los datos de de actividad del patrón preparado que se le suministran al programa. La curva de eficiencia, como se observa en la figura, se divide en dos curvas diferenciadas, antes y después de la rodilla que se marca en la figura con una raya azul. Las función que describe esta eficiencia en función de la energía es del tipo $\ln(\varepsilon) = a + b \cdot \ln(E) + c \cdot \ln(E^2)$.

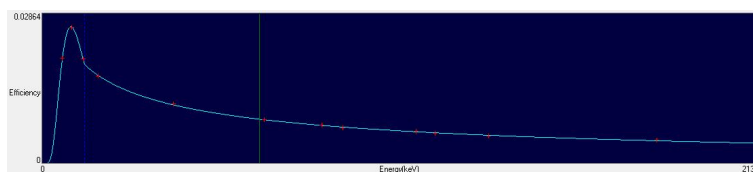


Figura 3.13: Calibrado en eficiencia sobre la muestra.

3.2.2.2. Muestreo

El procedimiento general de recogida de muestras para la determinación de radón implica que las muestras de agua se recojan en frascos o botellas de cierre hermético completamente llenas, para que no contengan nada de aire, evitando burbujas y selladas con film durante su transporte. Para llevar a cabo la espectrometría gamma se debe recoger la muestra en el mismo envase en el que vaya a ser medida, para evitar así pérdidas por transvases, por lo que siempre se recoge en el tipo de envase que se tenga calibrado. En el caso de nuestro laboratorio, para este tipo de determinaciones se tiene calibrado un frasco margarita cuadrado de 1 L que tiene doble tapa.

El procedimiento para realizar la toma de muestra en grifos o aguas superficiales es el explicado en el apartado § 3.1.3.1 sobre muestro para centelleo líquido, para este tipo de envase.

Las muestras deben ser medidas en el menor tiempo posible por lo que deben

trasladarse cuanto antes al laboratorio. Durante el transporte es conveniente refrigerarlas, aunque antes de medir deben alcanzar la temperatura ambiente de nuevo.

3.2.2.3. Medida y cálculo de actividad en las muestras.

Para realizar la medida no se necesita ninguna preparación previa de las muestras. La muestra, ya recogida en el envase adecuado, se sitúa encima del detector, dentro del blindaje, y se comienza la adquisición.

Además de la medida de la muestra, para calcular la actividad debemos conocer el fondo de nuestro detector, que se mide durante largos tiempos (600000 s) para tenerlo correctamente caracterizado y alcanzar bajos límites de detección.

La actividad se calcula posteriormente con el programa GammaVision para cada fotopico de interés del ^{214}Bi y ^{214}Pb , a sus energías correspondientes, como:

$$A_{E_i} = \frac{(N - N_f)}{t \cdot \varepsilon_i \cdot P_{\gamma_i} \cdot V} \quad (3.8)$$

donde A_{E_i} , es la actividad de cada fotopico a su energía característica, N , es el número de cuentas de cada fotopico y N_f , las cuentas en su fondo y ε_i es la eficiencia calculada para la energía del fotopico. P_{γ_i} , es la probabilidad de la emisión gamma, t es el tiempo de medida y V el volumen o la cantidad de muestra.

Cuando existen diferentes energías de desintegración para un mismo isótopo la actividad de cada uno se puede calcular como la suma proporcional a su emisión en cada energía :

$$A_{media} = \frac{\sum A_{E_i} \cdot P_{\gamma_i}}{\sum P_{\gamma_i}} \quad (3.9)$$

El programa puede calcular esta actividad media, pero no es de nuestro interés puesto que queremos ver el comportamiento en todas las energías para evaluar si existen interferencias del fondo o de otros isótopos.

El programa GammaVision permite utilizar una corrección por decaimiento multiplicando la actividad calculada por un factor TDC , que incluye el decai-

miento desde la recogida de la muestra hasta la medida, DC , el decaimiento durante la medida, DDA , y el decaimiento durante la recogida de la muestra en el caso de que esta sea extendida en el tiempo, DDC .

$$A_{correctada} = A_{E_i} \cdot TDC$$

$$TDC = DC \cdot DDA \cdot DDC$$

siendo:

$$DDA = \frac{\ln(2) \cdot \frac{t}{T_{1/2}}}{1 - e^{-\ln(2) \cdot \frac{t}{T_{1/2}}}}$$

$$DC = e^{-\ln(2) \cdot \frac{t_r}{T_{1/2}}}$$

Donde t es el tiempo de medida de la muestra y t_r es el tiempo desde la recogida hasta la medida. Para el análisis de radón en aguas se utilizan las correcciones DC y DDA, pero se desestima DDC, ya que la recogida de la muestra es puntual.

La incertidumbre asociada a la actividad será la combinación de todas las incertidumbres relativa asociadas al calculo de la actividad:

$$U_{A_{E_i}} = \sqrt{u_N^2 + u_f^2 + u_\varepsilon^2 + u_{P_\gamma}^2 + u_V^2} \quad (3.10)$$

La incertidumbre relativa de la probabilidad de emisión de cada energía, u_{P_γ} , está tabulada en “*Model A53 Master Library*” de ORTEC, y se introduce manualmente en el programa GammaVision.

La incertidumbre relativa del volumen, u_V , es la incertidumbre del recipiente que utilizemos, u_N , es la incertidumbre de las cuentas del fotopico u_f las de su fondo correspondiente.

La incertidumbre de la eficiencia, u_ε , estará compuesta por la incertidumbre de la curva de calibrado en eficiencia y la incertidumbre de los patrones como:

$$u_\varepsilon = \sqrt{u_{calib.}^2 + u_{patron}^2} \quad (3.11)$$

donde la incertidumbre de calibrado se calcula en base al tipo de curva y la incertidumbre de los patrones se calcula propagando todas las incertidumbres

involucradas en la disolución y preparación de estos.

La incertidumbre de la actividad corregida por decaimiento, viene dada, según el propio programa GammaVision como:

$$UA_{corregida} = e^{\frac{\ln(2) \cdot \Delta t}{T_{1/2}}} \sqrt{U_{A_{media}}^2 + \frac{(A_{media} \cdot \ln(2) \cdot \Delta t)^2}{T_{1/2}^4} \cdot UT_{1/2}^2} \quad (3.12)$$

Selección del tiempo de medida

En espectrometría gamma es importante utilizar tiempos de medida lo suficientemente elevados para tener una estadística mayor en los fotopicos de interés y alcanzar los límites de detección o actividades mínimas detectables (AMD) deseables.

Para establecer los tiempos de medida de las muestras hemos realizado un estudio de una muestra procedente de una intercomparación, por lo tanto de concentración conocida $A = 507 \pm 69 \text{ Bq/L}$, a la que se le han realizado 6 medidas en 3 días consecutivos, 3 de ellas de 12000 segundos, algo más de tres horas, y otras tres de 80000 segundos, incluyendo en esta última el tiempo de la medida anterior con la siguiente secuencia:

- 1a) 12000 s
- 1b) 80000 s. Incluyendo los 12000 s de la medida anterior.
- 2b) 12000 s.
- 2b) 80000 s. Incluyendo la medida 2a.
- 3a) 12000 s
- 3b) 80000 s. Incluyendo la medida 3a.

Los resultados se muestran en la tabla 3.9. Las actividades halladas en las medidas cortas y en las largas son equivalentes, lo que demuestra que para este nivel de actividad una medida con un tiempo medianamente corto, 3,5 h, es más que suficiente para alcanzar una estadística que permita realizar el análisis. Sin embargo se observa que, a pesar de estar la actividad corregida por decaimiento, ésta es menor conforme pasa el tiempo, lo que nos indica una pérdida de radón en el envase. Esta pérdida, según se vió cuando hicimos el estudio sobre el envase de transporte y almacenamiento de las muestras, no se producía, pero durante la medida en el detector gamma la muestra no se encuentra refrigerada,

sino que está a la temperatura del laboratorio, que es de alrededor de 23 °C todo el año, por lo que vemos que la refrigeración de las muestras es necesaria. Debido a esto sería siempre conveniente seleccionar tiempos cortos de medida.

Tabla 3.9: Actividades corregidas por decaimiento para cada fotopico.

	Medida 1		Medida 2		Medida 3	
	12000 s	80000 s	12000 s	80000 s	12000 s	80000 s
^{222}Rn	497 ± 26	494 ± 25	498 ± 26	487 ± 25	478 ± 25	471 ± 25

Las actividades mínimas detectables se han calculado para cada uno de los fotopicos de los isótopos de ^{214}Bi y ^{214}Pb en sus diferentes energías teniendo en cuenta las cuentas del fondo para dicho fotopico, CPM_{fondo} , con la siguiente expresión:

$$AMD_{i,e} = 2 \cdot \frac{(1 + \sqrt{1 + 2 \cdot CPM_{fondo}})}{tiempo}$$

El AMD medio para cada isótopo se calcula teniendo en cuenta las probabilidades de emisión de cada fotopico del isótopo, $P_{i,e}$:

$$AMD_i = \frac{\sum AMD_{i,e} \cdot P_{i,e}}{\sum P_{i,e}}$$

Como en el caso de la medida de ^{222}Rn utilizamos el equilibrio secular de este con sus descendientes ^{214}Pb y ^{214}Bi , su AMD se calcula en base a la energía de todos los fotopicos de ambos isótopos.

Los resultados, en Bq/L, se muestran en la tabla 3.10. Se puede observar que para los fotopicos de mayor intensidad, $^{214}\text{Bi} - A$ y $^{214}\text{Pb} - A$, los valores encontrados son menores que para las emisiones menos probables, debido a que existe una mayor estadística de recuento, y son los que mayor peso tienen en el AMD medio utilizado para el ^{222}Rn . El AMD encontrado con 12000 s el primer día, cuya actividad es más alta y su recuento tiene mayor estadística, es de 2 Bq/L, sin embargo los días siguientes, debido a una menor estadística y probablemente una variación en el fondo del detector muy puntual, este AMD aumenta un 30 %. Las medidas más largas, de 80000 s, proporcionan unos AMD

similares todos los días, de alrededor de 1 Bq/L, ya que tienen mayor estadística y las variaciones en el fondo del espectro quedan más diluidas.

Tabla 3.10: AMD según los tiempos de medida (Bq/L).

	Medida 1		Medida 2		Medida3	
	12000	80000	12000	80000	12000	80000
$^{214}\text{Bi} - A$	1,6	0,7	1,7	0,7	1,7	0,6
$^{214}\text{Bi} - B$	3,7	1,7	3,7	1,6	3,9	1,5
$^{214}\text{Bi} - C$	2,0	1,9	5,3	2,0	4,6	1,8
^{214}Bi	1,7	1,1	2,8	1,1	2,7	1,0
$^{214}\text{Pb} - A$	2,2	0,8	2,7	1,0	2,4	0,7
$^{214}\text{Pb} - B$	5,1	2,0	5,1	2,1	4,1	1,7
^{214}Pb	2,3	1,2	3,5	1,4	3,0	1,0
^{222}Rn	2,0	1,2	3,1	1,2	2,8	1,0

Como se desea comparar las medidas obtenidas con las que se obtengan con la técnica de centelleo líquido, para la que se alcanzaba una AMD de alrededor 0,6 Bq/L, se debería seleccionar un tiempo de medida de 80000 s o superior, ya que como se observa, a través de los picos más intensos Bi-A y Pb-A, se alcanzan AMDs de 0,7 y 0,8 Bq/L. Sin embargo, como se ha visto podemos tener una pérdida de radón en el envase durante esta medida. Si la actividad de la muestra es elevada no existe ningún problema con medir tiempos más cortos incluso de los 12000 s, el problema se presenta cuando las muestras tienen actividades de alrededor del límite de detección, donde una medida demasiado larga aportaría un AMD menor pero que podría darnos actividades indetectables si existen pérdidas durante la medida.

Para la medida de radón en aguas de consumo, cuyo nivel de acción en España es de 500 Bq/L [RD316], las medidas de tan solo 12000 s serían suficientes para alcanzar una AMD de entre 2 – 3 Bq/L, por debajo de los 10 Bq/L que marca el propio Real Decreto para laboratorios que realicen este tipo de análisis.

Seguimiento de decaimiento de una muestra

Los fotopicos más intensos tanto del ^{214}Bi ($^{214}\text{Bi-A}$) como del ^{214}Pb ($^{214}\text{Pb-A}$) pueden estar interferidos por otros isótopos, como se vio en la tabla 3.7. Para evaluar la existencia de estos interferentes en la muestra se comprueba que se cumple la ley de desintegración radiactiva, $A = A_0 e^{-\lambda t}$, siendo λ la correspondiente al radón ($\lambda = 0,18 \text{ dia}^{-1}$) para el ^{214}Bi y para el ^{214}Pb , en equilibrio con radiactivo con el ^{222}Rn , en sus diferentes energías de decaimiento.

En la figura 3.14 se han representado las curvas de decaimiento del isótopo ^{214}Bi y ^{214}Pb , respectivamente en sus diferentes energías para una muestra procedente de una intercomparación, cuya actividad consensuada es de $112 \pm 22 \text{ Bq/L}$. En esta ocasión, como las medidas no eran seguidas en el tiempo, la muestra se ha mantenido refrigerada entre medida y medida para evitar pérdidas en el envase, sacándola de la nevera unas horas antes de la medida para que alcanzara la temperatura ambiente. Además las medidas han sido realizadas en períodos cortos (3,5 h). Las constantes de desintegración obtenidas, λ_i , así como la concentración inicial se pueden ver en la tabla 3.11. Se encuentra en todos los casos valores de λ_i superiores a la $\lambda_{^{222}\text{Rn}}$, en porcentajes que varían entre el 11 % para el $^{214}\text{Bi-A}$, que es el fotopico más intenso, y un 33 % para el $^{214}\text{Pb-B}$. Lo que puede ser debido a pérdidas en el envase o simplemente a las variaciones de estos radionúclidos en el fondo los diferentes días en los que la muestra ha sido medida.

Esto mismo ocurre con la actividad inicial de radón calculada a partir de estas curvas, que muestra actividades más cercanas a la actividad real para los fotopicos más intensos, con diferencias de entre un 4 y un 10 % para el $^{214}\text{Bi-A}$ y $^{214}\text{Pb-A}$, respectivamente, una desviación poco importante y dentro de la incertidumbre de la medida, mientras que se encuentran diferencias del 16 y 21 % para los picos menos intensos, $^{214}\text{Bi-B}$ y $^{214}\text{Bi-C}$, que pueden ser debidas a efectos del fondo.

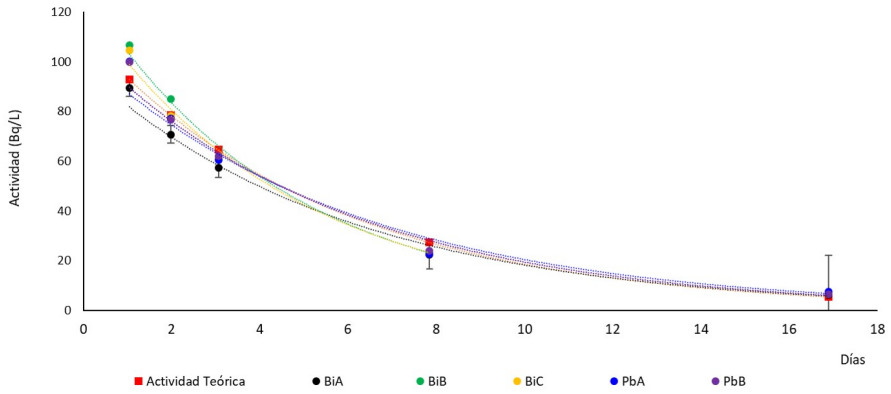


Figura 3.14: Decaimiento de los fotopicos de Plomo y Bismuto.

Tabla 3.11: Constantes de decaimiento de los fotopicos de ^{214}Bi y ^{214}Pb .

Fotopico	λ (dias^{-1})	A_0 (Bq/L)
$^{214}\text{Bi}-\text{A}$	$0,20 \pm 0,01$	108 ± 8
$^{214}\text{Bi}-\text{B}$	$0,24 \pm 0,01$	136 ± 12
$^{214}\text{Bi}-\text{C}$	$0,24 \pm 0,01$	130 ± 12
$^{214}\text{Pb}-\text{A}$	$0,22 \pm 0,01$	123 ± 12
$^{214}\text{Pb}-\text{B}$	$0,22 \pm 0,01$	122 ± 8

3.2.3. Validación del método de espectrometría gamma

Para validar el método de espectrometría gamma en el laboratorio se han utilizado las muestras de aguas procedentes de intercomparaciones y además, debido a que estas aguas tenían concentraciones muy elevadas, se han preparado una muestra artificial de radón añadiendo en un envase de medida de la muestra un patrón de ^{226}Ra y agua destilada, previamente hervida y agitada, y esperando a que estos alcanzaran el equilibrio.

El método se ha comprobado estudiando su exactitud a través del sesgo frente a la concentración referencia de todas ellas y la precisión se ha evaluado a través de desviación estándar relativa ($RSD\%$), como en el caso del centelleo líquido, §3.1.4. Los resultados obtenidos se muestran en la tabla 3.12.

Las muestra preparada con una baja actividad proporciona un sesgo de tan solo el 0,6 %, y una desviación estándar relativa del 15 %, aceptable para este nivel de actividad. Las muestras reales provenientes de intercomparaciones, con actividades más elevadas, nos ofrecen sesgos de entre 1,2 % y 11 % y una imprecisión de entre 2,4 y 3 %. Por todo ello se puede concluir que el método de espectrometría gamma tiene la suficiente precisión y exactitud para considerarlo un método válido para la determinación de ^{222}Rn en muestras de agua.

Tabla 3.12: Parámetros de Validación en la determinación de ^{222}Rn mediante espectrometría Gamma

	Muestra	Actividad Referencia)	Actividad Medida	Sesgo	RSD
ACTIVIDAD		(Bq/L)	(Bq/L)	(%)	(%)
Baja	Preparada	$3,69 \pm 0,13$	$3,71 \pm 0,55$	0,6	15
Alta	Inter1	507 ± 69	494 ± 25	4,5	2,4
	Inter2	320 ± 61	324 ± 27	1,24	-
	Inter3	91 ± 18	81 ± 11	11	3

3.3. Comparación de las técnicas LSC y Gamma para la determinación de radón agua

En los apartados anteriores § 3.1 y § 3.2 se han descrito, optimizado y validado dos métodos diferentes para la determinación de gas ^{222}Rn en agua, centelleo líquido y espectrometría gamma. Para evaluar si ambas técnicas son comparables se han medido varias muestras con ambos métodos, las muestras se recogieron por duplicado en los envases correspondientes. Los resultados obtenidos con ambos métodos se presentan en la tabla 3.13 para aquellas muestras que dieron resultados por encima de los límites de detección de ambas técnicas.

Hemos encontrado que los valores de actividad, con su incertidumbre asociada, son equiparables en ambos métodos y las diferencias encontradas son del mismo orden que sus incertidumbres. Un test $t - Student$ para muestras independientes realizado sobre los resultados de ambos métodos muestra que los valores son comparables con un 95 % de confianza ($p = 0,195$; $\alpha = 0,05$).

Tabla 3.13: Resultados de muestras medidas por centelleo líquido y espectrometría gamma.

Muestra	Espectrometría gamma		LSC	
	Actividad (Bq/L)	% Incertidumbre	Actividad (Bq/L)	% Incertidumbre
M1	$4,3 \pm 0,9$	21	$3,2 \pm 0,7$	21
M2	$4,4 \pm 1,1$	24	$4,5 \pm 0,7$	14
M3	$5,1 \pm 0,9$	18	$4,6 \pm 1,6$	34
M4	$5,4 \pm 0,7$	12	$4,0 \pm 0,8$	20
M5	6 ± 1	19	$4,7 \pm 1,7$	36
M6	6 ± 1	17	$6,8 \pm 2,4$	35
M7	$10,8 \pm 1,5$	14	$8,1 \pm 1,7$	21
M8	$21,5 \pm 2,6$	12	$23,1 \pm 1,7$	7
M9	$30,8 \pm 3,5$	11	35 ± 2	6
M10	228 ± 24	10	228 ± 9	4
M11	81 ± 11	14	94 ± 6	6
M12	324 ± 21	7	350 ± 45	13

Las exactitud de ambos métodos es similar a bajas actividades, pero para mayores actividades es más exacto el método de centelleo líquido, ya que este no está influenciado por variaciones del fondo. Ambas incertidumbres están

influenciadas, además de por todas las incertidumbres asociadas a la propia medida y a los calibrados, que son similares para todas las muestras ya que han sido medidas en las mismas condiciones, por el tiempo que se ha tardado en medirlas, debido a que la corrección por desintegración produce una gran incertidumbre añadida, más notable a bajas concentraciones. Si el tiempo desde la recogida hasta la medida es elevado las incertidumbres son mucho mayores, como ocurre en $M1$ y $M2$ en espectrometría gamma y en $M5$, $M6$ y $M7$ en centelleo líquido, que no fueron medidas el primer día en cada uno de sus respectivos equipos por necesidades del laboratorio. En espectrometría gamma además se deben tener en cuenta las posibles variaciones de fondo o interferentes, que en LSC se evitan.

Puesto que ambos métodos son válidos y los valores que nos ofrecen son comparables, para escoger una u otra técnica hay que basarse en otros parámetros como el coste económico y temporal, el consumo de reactivos o las actividades mínimas detectables.

Las dos técnicas precisan poca o ninguna preparación de la muestra y son relativamente económicas, ya que el consumo de reactivos es mínimo. En espectrometría gamma solo se consume el nitrógeno líquido que mantiene frío el detector y en centelleo líquido el líquido centelleador que, aunque es tóxico para el medio ambiente, es de los considerados más seguros y solo requiere 10 mL por muestra.

El tiempo empleado para cada análisis depende de la actividad mínima detectable que se desee alcanzar. El AMD para el centelleo líquido para el tiempo escogido de 100 min (1,6 h) es de entre 0,6 y 1 Bq/L inferior al del método de espectrometría gamma realizado en 12000 s (3,3 h), de 2 Bq/L. Para alcanzar un AMD similar al de centelleo con espectrometría gamma se necesita una medida mucho más larga, con 80000 s (22,2 h) el AMD es de 1,2 Bq/L. Esto supone que en el tiempo en el que se mide una muestra en espectrometría gamma se puedan medir 10 muestras mediante centelleo líquido, lo que, además de evitar el decaimiento de las muestras en espera, la convierte en la técnica más económica.

Capítulo 4

Estimación de las dosis efectivas asociadas al gas radón

Como se explicó en el apartado de la introducción § 1.1.4, sobre la radiactividad que recibe el ser humano, hay distintas formas de cuantificarla. Para la estimación del daño producido por la radiación se utilizan los términos de dosis absorbida, dosis equivalente a un órgano o la dosis efectiva, que es la suma de todas las dosis equivalentes producidas en los diferentes órganos en los que la radiación actúa.

El radón, como la mayoría de los radionúclidos, puede incorporarse al cuerpo humano de dos maneras; mediante inhalación al respirar o mediante la ingestión con el agua de consumo o alimentos. En los siguientes apartados se explican los cálculos de las dosis efectivas por ambas vías y las consideraciones necesarias utilizadas para estimarlas. En muchas ocasiones, por simplicidad, se utilizará solo el término «dosis», pero siempre se estará hablando de dosis efectivas.

4.1. Estimación de la dosis efectiva por inhalación de descendientes del radón

4.1.1. Dosis debidas a la inhalación de radón.

El daño producido por el gas radón por inhalación, no es debido al radón en sí, sino a sus descendientes emisores alfa de vida corta, ya que el hecho de que el radón sea un gas hace que tras ser inhalado pueda ser expulsado, no siendo así para sus descendientes sólidos.

La dosis efectiva por inhalación que el radón y su descendencia aporta se puede estimar a través de factores de conversión a dosis, DCF, que relaciona la actividad que hay en el ambiente con el dosis que estos producen. Estos factores, normalmente, se dan en unidades de mSv/*WLM*

El WL «Working Level» se ha utilizado tradicionalmente para cuantificar el daño producido por la descendencia del radón y su unidad es el Bqh. Se refiere a la dosis que se recibe a causa de los descendientes del radón, en equilibrio con este, cuando se está expuesto a una actividad específica de radón de 1 Bq/m³ durante una hora. Es decir, a la mezcla de radón y descendientes en equilibrio que proporcionan una energía alfa de $1,3 \cdot 10^8$ MeV en un metro cúbico de aire, 3750 Bq/m³ si se tienen en cuenta las energías alfa de los diferentes descendientes. El «Working Level Month», *WLM*, es esta misma unidad, pero aplicada a un mes de trabajo, teniendo en cuenta que un mes tiene 170 horas de trabajo, por lo que 1*WLM* equivale a $6,37 \cdot 10^5$ Bqh/m³.

Si tenemos una concentración de radón *C* en desequilibrio con sus descendientes, podemos pasarla a concentración equivalente de descendientes multiplicando esta por el factor de equilibrio, *F*. Por lo tanto la exposición, *E*, en *WLM*, en un determinado tiempo *t* de exposición puede calcularse como:

$$E = \frac{F \cdot C \cdot t}{6,37 \cdot 10^5}$$

La dosis efectiva en mSv se calcula teniendo en cuenta los factores de conversión a dosis DCF (mSv/WLM):

$$D(\text{mSv}) = E \cdot DCF$$

siendo E la dosis en WLM.

$$D(\text{mSv}) = \frac{F C t}{6,37 \cdot 10^5} DCF$$

Estas tres variables, concentraciones de radón, factores de equilibrio y tiempos de permanencia, son diferentes a lo largo del año. Por consiguiente, la dosis total durante un año será la suma de todas las dosis recibidas en cada período:

$$D(\text{mSv}) = \frac{DCF}{6,37 \cdot 10^5} \sum_{i=1}^n F_i C_i t_i \quad (4.1)$$

En el apartado § 1.2.7.1, sobre recomendaciones y legislación del radón en el aire, se explicó que las actividades de radón a partir de las cuales había que proteger al público y a los trabajadores han ido cambiando a lo largo de los años, desde los 200 Bq/m³ de las primeras publicaciones, a los 300 Bq/m³ que se encuentran legislados, pasando por varios cambios mayores o menores. La explicación a que estos niveles de actividad hayan variado en el tiempo es que a lo largo de los años han ido apareciendo nuevos modelos dosimétricos y epidemiológicos con respecto al radón y su descendencia.

Los primeros factores de conversión a dosis recomendados por la ICRP 65 [ICR93] estaban basados en una aproximación epidemiológica apoyada en estudios realizados sobre grupos de mineros en los que se había relacionado la presencia del radón con enfermedades ocupacionales. Los factores de conversión a dosis se obtuvieron por comparación de directa entre el detrimento por unidad de radón (como el riesgo asociado al cáncer de pulmón) y el detrimento total asociado con una unidad de dosis efectiva. Se establecieron entonces dos valores diferentes de DCF para el público y para los trabajadores, de 4 mSv/WLM y 5 mSv/WLM, respectivamente.

En el año 1994, un año después de la publicación del ICRP65, se publica un nuevo modelo de tracto respiratorio [ICR94]. El modelo utilizado se basa en la

energía que depositan los descendientes del radón en los diferentes tejidos del tracto respiratorio, cuya preferencia de deposición depende del tamaño de las partículas a las que estos se encuentren asociados, y el daño que estos producen en cada uno de ellos.

Tabla 4.1: Influencia de los parámetros físicos de las partículas en la dosis.

	Tamaño de partículas	Zona deposición	%Detrimento total
Libres	< 5 nm	Bronquial	80
Asociadas a partículas	< 10 nm	Bronquiolar	15
Asociadas a partículas	10 – 100 nm	Alveolar-Intersticial	0.05

Datos obtenidos de: Influence of physical parameters on doses from radon exposures[Por02]

Los estudios realizados con este nuevo modelo por Porstendoerfer y colaboradores [Por02, Por05, Por01, Por96, Por99], sobre las condiciones de las partículas en suspensión y el detrimento asociado a partículas de diferentes tamaños, cuyos resultados se muestran en la tabla 4.1, concluyen que las partículas libres de descendientes de radón cuyo tamaño es inferior a 5 nm son las responsables del 80% del detrimento total, ya que su energía se deposita en la zona bronquial, donde más daño producen y más casos de cáncer asociados al radón han sido registrados. Basándose en las condiciones de los aerosoles y, por tanto, en la distribución de los descendientes del radón en estos, este trabajo concluye que los factores de conversión a dosis a utilizar deberían ser de 8 mSv/WLM en hogares y 11,5 mSv/WLM en lugares de trabajo. Otros estudios [Dar06, Har12] sugieren un factor de conversión a dosis similar para lugares de trabajo, $DCF = 12 \text{ mSv/WLM}$, lo que supone que el riesgo de cáncer de pulmón debido al radón es el doble de lo que hasta entonces se había pensado [Mar10, ICR10, ICR07].

En el año 2017, el ICRP saca una nueva publicación en la que se han tenido en cuenta los estudios anteriormente realizados y unas velocidades de respiración superiores para trabajadores, ya que considera que la actividad física acelera la velocidad de respiración y por tanto los factores de conversión a dosis deben ser superiores a los hasta ahora calculados [ICR17]. En esta nueva publicación se proponen proponen unos nuevos valores de DCF dependiendo del

tipo de instalación. Para ello se ha utilizado la fracción de estos descendientes asociada a partículas (f_a) y la que no asociada (f_p) con una relación diferente dependiendo del lugar donde se utilice y de las condiciones habituales como, $DCF = 86f_p + 12f_a$ en cuevas, $DCF = 86f_p + 10f_a$ en minas y $DCF = 86f_p + 14f_a$ para lugares subterráneos de trabajo diferentes de los anteriores.

Teniendo en cuenta las condiciones mayoritarias de fracción libre y asociada encontradas en la bibliografía en diferentes estudios, se han tabulado unos valores de DFC diferentes para estos tres tipos de instalaciones, como se muestra en la tabla 4.2, donde se resumen las aproximaciones y valores aceptados a lo largo de los años, junto con las concentraciones máximas legisladas y las dosis que estas supondrían teniendo en cuenta estos factores. Estos factores son mayores en el caso de cuevas turísticas, con un ambiente interior más limpio de partículas, o trabajos en lugares subterráneos donde no se genere un gran número de partículas y alrededor de un 50% de estos en minas donde por el trabajo que se realiza existe polvo en suspensión.

Como se observa, si tenemos en cuenta los últimos factores de conversión a dosis [ICR17], las dosis de radón con valores de concentración de actividad legislados actualmente son excesivamente elevadas, sobrepasando los 6 mSv anuales en trabajos diferentes de minas. En los últimos estudios, realizados con estos factores, se recomiendan bajar los límites en concentración de actividad a un máximo de 100 Bq/m^3 , que supondrían, en el peor de los casos, una dosis de 3 mSv/año.

4.1.2. Limitación en actividad

Por cuestiones de simplicidad, en la legislación las limitaciones, o niveles a partir de los cuales se debe actuar, suelen darse en actividad por unidad de volumen de aire (Ej: 300 Bq/m^3 en puestos de trabajo). Para calcular las actividades a las cuales habría que tomar una decisión con respecto al radón en el interior de un edificio se han tenido en cuenta valores promedio aceptados, como un tiempo de permanencia en el puesto de trabajo de 2000 horas anuales y un factor de equilibrio $F = 0,4$, que es la media de los encontrados habitualmente. Sin embargo, en la guía de recomendación del CSN 11.04 sobre «*Metodología para la evaluación de exposición al radón en lugares de trabajo*» [CSN12c], se explica que si el tiempo de permanencia es diferente, o el factor de

Tabla 4.2: Diferentes factores de conversión a dosis recomendados por el ICRP.

Tipo de aproximación	Población	DCF (mSv/WLM)	F	Horas	Concentración límite (Bq/m ³)	Dosis a la concentración límite (mSv/año)	
Epidemiológica	Trabajadores	5	0,4	2000	500 – 1500	3,1 – 9,4	
	Público (casas)	4	0,4	7000	200 – 600	3,5 – 10,4	
ICRP103 Dosimétrica	Trabajadores	12	0,4	2000	300	4,5	
	Trabajos interiores	20	0,4	2000	300	7,5	
ICRP 137 Dosimétrica	Mina	11	0,4	2000	300 – 600	4,1	
	Cueva turística	24	0,4	2000	300 – 600	9,1	

equilibrio ha sido medido, se puede calcular una concentración efectiva recibida por las personas que pueda ser comparada a estos niveles de acción, aplicando correcciones de estos dos factores como:

$$[Rn_{Ef}] = [Rn] \cdot C_F \cdot C_t \quad (4.2)$$

donde C_F es la corrección al factor de equilibrio, que será el factor medido dividido por el valor implícito en los factores de conversión (0,4), y C_t el factor de corrección del tiempo, que corresponde al cociente entre el tiempo real de permanencia y 2000 horas.

4.2. Estimación de la dosis debida a la ingestión de radón

La peligrosidad del radón que pueda existir en el agua es mayor por la emanación que este produce al aire que por su propia ingesta. Debido a ello, durante muchos años las dosis debidas a la ingestión de radón no han sido consideradas. En su lugar, se ha estimado que la medida de radón en el aire de los hogares incluye el radón que haya podido emanar del agua. Sin embargo, los últimos estudios muestran que las dosis debidas a la ingesta de este radionúclido podrían hacer que se sobrepasaran los límites de dosis de 0,1 mSv/año recomendados para el agua de consumo en muchos lugares donde se utilizan aguas subterráneas, y/o aguas privadas como casas de campo o urbanizaciones[Che19].

Las dosis proporcionadas por el radón en el agua deberán ser, en ausencia de medidas en aire, la suma de las dosis proporcionadas por la ingestión directa de agua y por la inhalación del radón emanado de la misma:

$$D_{total,agua} = D_{inh,agua} + D_{ing}$$

Para estimar las dosis por inhalación del radón emanado se tiene en cuenta que el coeficiente de transferencia del radón entre el agua y el aire, en condiciones normales, es de $T = 1 \cdot 10^{-4}$ [NAS99]. Considerando el cálculo habitual para la inhalación explicado en apartados en anteriores se establece:

$$D_{inh,agua} = C_{Rn,agua} \cdot T \cdot F \cdot DCF \cdot t \quad (4.3)$$

donde $C_{Rn,agua}$ es la concentración de radón en el agua, F el factor de equilibrio entre el radón y sus descendientes, DCF_{inh} el factor de conversión a dosis para la inhalación de radón y t el tiempo de permanencia, que para hogares está estimado en 7000 h al año.

La dosis por ingestión directa de radón en el agua vendrá dada por:

$$D_{ing} = C_{Rn,agua} \cdot DCF_{ing} \cdot V \quad (4.4)$$

siendo $C_{Rn,agua}$ la concentración de radón en el agua, DCF_{ing} el factor de

conversión a dosis para la ingestión de radón y V el volumen de agua.

La mayoría de los modelos de ingestión de radón con el agua suponen que el radón, una vez ingerido, permanece en el estómago durante un tiempo, variable según el modelo y la cantidad, y el tiempo transcurrido desde la ingesta de otros alimentos, desde donde pasa al intestino delgado y de este a la sangre y al resto de órganos, obviando la posible difusión del gas en las paredes del estómago. Por este motivo, y al contrario de lo que ocurre en la dosis por inhalación, en el caso de la dosis por ingestión de radón la mayor contribución es debida al propio radón, y no a sus descendientes, afectando al estómago principalmente [Bem14].

Aunque ya se habían propuesto algunos modelos biocinéticos para la ingestión de radón y factores de conversión a dosis para este radionúclido con anterioridad ($DCF_{ing} = 1 \cdot 10^{-8}$ Sv/Bq [Ken02]) hasta el año 2017 el ICRP no había propuesto ninguno [ICR17]. El modelo biocinético utilizado en esta ICRP es el propuesto por Legget y colaboradores [Leg13] para gases nobles. Este modelo es similar a los anteriores, aunque difiere en algunos aspectos, como el volumen de los diferentes compartimentos (órganos) y algunos coeficientes de transferencia de radón entre la sangre y diferentes órganos, quedando un factor de conversión a dosis $DCF_{ing} = 6,9 \cdot 10^{-10}$ Sv/Bq.

El volumen medio de agua consumida por habitante está estimado en una media de 2 L al día, o lo que es lo mismo, 730 L en un año. Como el radón emana del agua en abierto cuando esta no se consume directamente del grifo (envasada, café, té, etc.) tendrá una concentración de radón inferior a si es tomada directamente. Por ello la consideración de volumen de agua diaria de 2 L no es realista y en su lugar se utiliza el valor de 60 L/año recomendado por la UNSCEAR [UNS00].

Parte III

RESULTADOS

Capítulo 5

Concentraciones de gas radón en la Cueva de Sant Josep, Vall d'Uixò

5.1. Introducción

En este capítulo se presentan los niveles de radón que se han medido en el interior de la cueva de Sant Josep y cómo afectan a los trabajadores de dicha instalación. La acumulación de gas radón detectado es muy elevada, llegando a ser del orden de los 12 kBq/m^3 . Sin embargo, se han encontrado variaciones estacionales tanto de la concentración de radón como de su factor de equilibrio, que indican que el factor de equilibrio disminuye conforme aumenta el radón, lo que hace que las dosis aportadas por este sean mayores en meses en los que la concentración de radón es menos elevada y viceversa.

5.1.1. Situación y descripción general de la cueva

La cueva o gruta de Sant Josep se encuentra en el término municipal de La Vall d'Uixò, en la provincia de Castellón en la Comunidad Valenciana ($39^{\circ}49'29.2''\text{N}$, $0^{\circ}15'11.0''\text{W}$), como se indica en el mapa de la figura 5.1. En la zona, según el mapa de riesgo potencial de radón, no existen elevadas concentraciones, es decir, a priori, la zona no es una zona potencial de radón (Ver mapa zonas potenciales en el capítulo 1, figura 1.5)

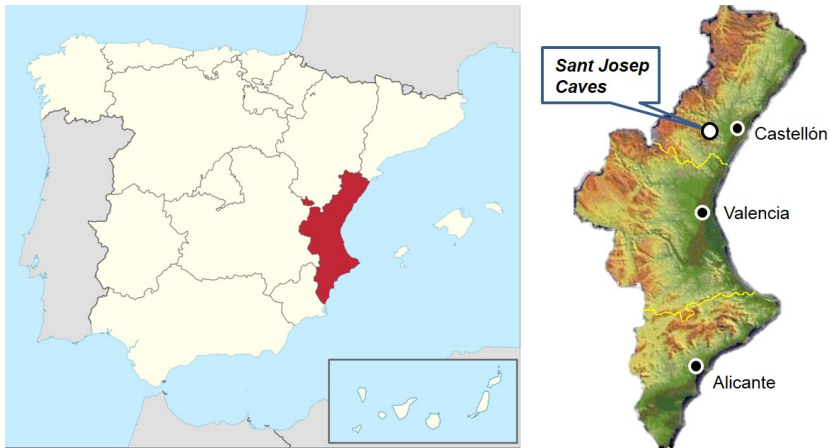


Figura 5.1: Ubicación de las Cueva de San Josep.

La gruta es un destino turístico de gran importancia y recibe cientos de visitas a diario. Una de las características más importantes de esta cueva es que por su interior discurre un río subterráneo navegable, considerado el más largo de Europa, por el que los turistas visitan alrededor de 800 metros abiertos al público en barcas, conducidas por barqueros-guía, personal de la cueva. Cabe destacar que el río descubierto hasta el momento tiene alrededor de 3 km (3010 m), pero solo los primeros 800 m son actualmente visitables por el público general, aunque sí que se realizan tareas de espeleología por el tramo no visitable.

El origen del río todavía está por descubrir, aunque existe una correlación bastante clara entre la crecida del río y las lluvias producidas en las montañas colindantes de la Sierra de Espadan. Son conocidos dos sumideros que abastecen al sistema, Avenç de la Guilla y Avenç de Riera, en el término municipal de

Alfondeguilla. A su salida el río recibe el nombre de Belcaire y, aunque tiene épocas secas, desemboca en el Mar Mediterráneo en el municipio de Moncofa.

La cavidad pertenece al período triásico medio, y está compuesta principalmente por dolomías y calizas, que como vimos en la introducción en el apartado §1.2.3, no tienen una elevada concentración de uranio, por lo que no cabría esperar altas concentraciones de radón en la cueva. Sin embargo, aunque la concentración de uranio sea baja, la elevada permeabilidad de estas rocas facilita la migración del radón desde su interior hasta el exterior.

La temperatura del interior de la cueva es constante todo el año, de unos 20 – 21°C en el aire y 17°C en el agua del río. La humedad es elevada, y oscila entre un 80 y un 90% durante todo el año. La cueva solo tiene una entrada conocida, pudiendo ser el único lugar por donde se produzca un intercambio de aire interior/externo. Esta entrada es el acceso a pie por la que entran trabajadores y turistas, que deja un aliviadero de agua a su izquierda que sirve para controlar las subidas del río. Muy cerca de la entrada se encuentra el que hemos denominado embarcadero 0, figura 5.2, donde se inicia el recorrido en barca. A medida que se entra en la cueva las paredes se estrechan formando galerías de altura variable de entre 2 – 8 m, que dan paso a salas más grandes, para volver a estrecharse y ensancharse, formando así sifones, algunos naturales y otros abiertos con barrenos para dar paso a las barcas, galerías y salas de diferentes alturas. La profundidad de las aguas llega desde los pocos centímetros hasta los 12 m.

El recorrido por la gruta, que se puede ver en la figura 5.2, se realiza en aproximadamente 40 minutos, los turistas embarcan en el denominado embarcadero 0 (EMB0), donde comienza la visita. Pocos metros más adelante la gruta se estrecha y el techo es más bajo, dejando un pequeño paso suficiente para las barcas. A partir de aquí la cavidad se ensancha en salas y vuelve a estrecharse en los pasos de una a otra varias veces (Sala de los Murciélagos, Lago Diana, Lago Azul). Tras pasar por la galería de los sifones, que es una galería de pequeños pasos abiertos al paso de barcas artificialmente, se llega al denominado embarcadero 1 (EMB1), donde los turistas desembarcan para hacer un recorrido de unos 250 metros a pie por la galería seca. En este punto los barqueros hacen el resto del recorrido hasta el embarcadero 2 (EMB2) por la galería inundada, que transcurre paralela a la seca, donde recogen de nuevo

a los turistas para hacer el recorrido de vuelta. A partir de este punto la cueva sigue más de 2 km pero, como solo son visitados puntualmente para tareas espeleológicas, no se han tenido en cuenta en este estudio.

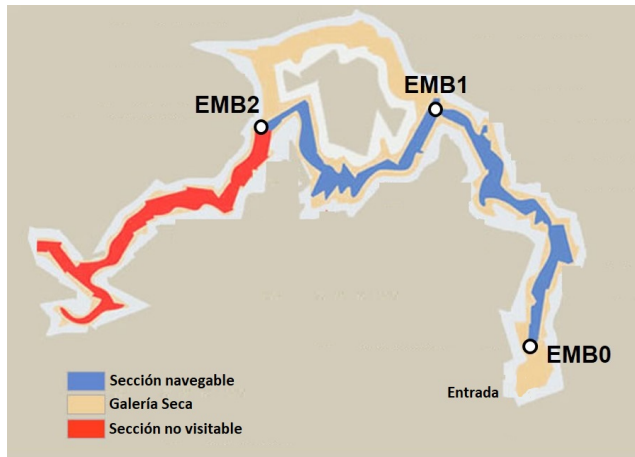


Figura 5.2: Esquema del interior de la cueva de Sant Josep con los puntos de muestreo, EMB0, EMB1 y EMB2.

Imagen obtenida de: <http://covesdesantjosep.es/wp-content/uploads/2016/03/mapa-coves-sant-josep.jpg>

5.2. Metodología del estudio

5.2.1. Tipo y densidad de detectores utilizados

En el capítulo 2 sobre metodologías de medidas de radón en aire, se compararon tres tipos de detectores en condiciones de humedad elevada: canister de carbón activo, detectores de película de tipo cerrado CR39 y detectores electrónicos RSCOUT, concluyendo que todos ellos eran apropiados para estas condiciones. Por esta razón, como además se había observado que existían grandes variaciones en la concentración del gas, ver tabla 5.1, se decidió colocar equipos electrónicos, que nos permitían observar estas variaciones más de cerca, en contraposición de los detectores pasivos CR39 con los que solo se podría conocer la medida integrada en todo su tiempo de exposición. Las canister de carbón activo fueron descartadas por el tedioso trabajo que supondría el tener que cambiarlas cada pocos días.

También se observó, en aquel momento, una gran diferencia en invierno y en verano, además de en la concentración de radón, del factor de equilibrio, ya que en verano se encontró un factor de equilibrio muy alejado de los recogidos en la bibliografía, $F = 0,06$. En aquel momento se atribuyó a un error en la medida aunque, como se verá, medidas posteriores han confirmado este dato. Por este motivo se decidió también medir el factor de equilibrio en diferentes jornadas, durante el año 2013 se midió en 4 meses diferentes (Febrero, Mayo, Agosto y Noviembre) y en 7 meses en el año 2014, haciendo especial hincapié en los meses de verano (Marzo, Mayo-Septiembre, Diciembre).

Tabla 5.1: Concentración de radón y factor de equilibrio en invierno y verano.

Fecha	Horas	^{222}Rn (Bq/m^3)	EEC (Bq/m^3)	F
13-07-11	21	$(775 \pm 14) \times 10^1$	446 ± 1	$0,06 \pm 0,02$
07-02-12	26	200 ± 10	77 ± 1	$0,39 \pm 0,05$

Para estudiar la homogeneidad se colocaron durante tres meses detectores en los puntos EMB0, EMB1 y EMB2, ver figura 5.2. Debido al hecho de que la cueva es el cauce de un río resulta difícil situarlos en otros lugares, que son

pequeñas galerías o lagos.

Los detectores se colocaron a más de 50 cm del suelo e intentando alejarlos de las paredes con ayuda de taburetes y trípodes.

Tabla 5.2: Homogeneidad de radón en el interior de la cueva

Punto de muestreo	Actividad de radón (Bq/m ³)		
	Febrero 2013	Marzo 2013	Abril 2013
Embarcadero 0	100 ± 20	80 ± 16	125 ± 25
Embarcadero 1	440 ± 20	(247 ± 49)x10 ¹	(93 ± 19)x10 ¹
Embarcadero 2	420 ± 80	(255 ± 51)x10 ¹	(95 ± 19)x10 ¹

Las actividades obtenidas, presentadas en la tabla 5.2, muestran que en los puntos de muestro EMB1 y EMB2 la concentración es la misma, sin embargo, es muy inferior en el punto de muestreo EMB0. Este punto es la entrada de la cueva, el lugar donde los turistas y trabajadores embarcan para comenzar el recorrido, que se encuentra ventilada de manera natural. Puesto que en los otros dos puntos se encontraron concentraciones prácticamente idénticas, se decidió utilizar las medidas del EMB1 para realizar el estudio de la cueva y estimar las concentraciones a las que los trabajadores estaban expuestos. Debido a que, de existir una diferencia de ventilación se notaría en este punto de muestreo, EMB1. Además en este punto hay un trabajador, rotativo, durante toda la jornada laboral, que ayuda al desembarque de los visitantes.

De acuerdo con lo indicado anteriormente, durante los dos años siguientes, 2013 y 2014, se monitoreó el aire de la cueva de forma continua en el embarcadero 1 con equipos electrónicos RSCOUT, midiendo el factor de equilibrio en diferentes jornadas.

5.3. Resultados de actividad de radón

En esta sección se presentan los resultados recogidos durante dos años completos de medidas, tanto de concentración de radón, como de factores de equilibrio, que nos permitirán estudiar el comportamiento del radón en la cueva, así como estimar las dosis que reciben los trabajadores, y el riesgo radiológico que estos asumen.

La concentración media de radón anual se puede considerar idéntica en los dos años, siendo $4,8 \pm 1,0 \text{ kBq/m}^3$ en el año 2013 y $4,4 \pm 1,0 \text{ kBq/m}^3$ en el 2014. El perfil de concentración de radón registrado a lo largo de los dos años tiene un comportamiento similar, tal y como se observa en la figura 5.3.

Las concentraciones de radón en el interior de la cueva varían estacionalmente, siendo mucho más bajas en los meses de invierno, con mínimas en enero de 500 Bq/m^3 y 300 Bq/m^3 en 2013 y 2014, respectivamente. Durante la primavera, las concentraciones comienzan a subir, para alcanzar máximos de hasta 12 kBq/m^3 en verano y a lo largo del otoño se ve un claro descenso hasta llegar de nuevo a los mínimos de invierno. Las concentraciones medias mes a mes pueden verse en la tabla 5.3.

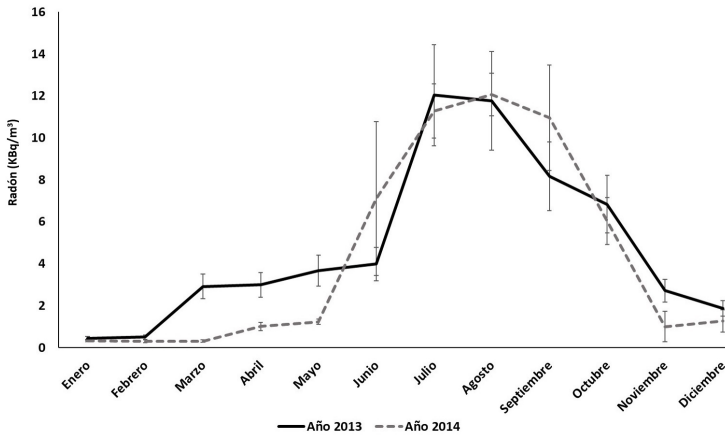


Figura 5.3: Perfil de concentración de radón en el interior de la cueva durante dos años consecutivos en el punto de muestreo EMB1. .

Tabla 5.3: Concentración de radón mensual en los años 2013 y 2014 en el punto de muestreo EMB1.

Mes	^{222}Rn 2013 (Bq/m ³)	^{222}Rn 2014 (Bq/m ³)
Enero	(482 ± 86)	(330 ± 70)
Febrero	(50 ± 10) $\times 10^1$	(300 ± 60)
Marzo	(291 ± 58) $\times 10^1$	(310 ± 60)
Abril	(299 ± 60) $\times 10^1$	(101 ± 19) $\times 10^1$
Mayo	(367 ± 73)	(123 ± 13) $\times 10^1$
Junio	(398 ± 80) $\times 10^1$	(71 ± 37) $\times 10^2$
Julio	(120 ± 24) $\times 10^2$	(113 ± 13) $\times 10^2$
Agosto	(118 ± 24) $\times 10^2$	(121 ± 10) $\times 10^1$
Septiembre	(82 ± 16) $\times 10^1$	(110 ± 25) $\times 10^2$
Octubre	(69 ± 14) $\times 10^2$	(60 ± 11) $\times 10^2$
Noviembre	(271 ± 54) $\times 10^1$	(100 ± 10) $\times 10^1$
Diciembre	(187 ± 37) $\times 10^1$	(127 ± 52) $\times 10^1$

5.3.1. Influencia de las condiciones ambientales exteriores

Para entender el comportamiento estacional, se ha estudiado la influencia de las variables ambientales exteriores (temperatura, humedad, precipitación y velocidad del viento) en la concentración de radón.

En el interior de la cueva la temperatura y la humedad permanecen prácticamente constantes durante todo el año, por lo que las variaciones de radón en su interior son debidas a las variables climáticas y al gradiente que pueda existir entre el interior y exterior de la cueva. Para estudiar la influencia de estas variables en la concentración de gas en el interior de la cueva se ha estudiado la correlación entre estas y los datos meteorológicos de la zona. Los datos climatológicos han sido tomados, entre otros, de la Agencia Estatal de Meteorología © AEMET, para la estación de Almazora en Castellón de la Plana, por ser la más cercana y de condiciones más similares a las del municipio donde se sitúa la cueva.

Las representaciones gráficas de dispersión de los valores de concentración de radón frente a estas condiciones, ver figura 5.4, parecen indicar que existe una correlación positiva entre la temperatura exterior de la cueva y la concentración de radón en el interior, es decir, cuanto más calor hace en el exterior de la cueva mayor es la concentración de radón en el interior. El coeficiente de correlación de Pearson, que indica el grado de covariación entre estas dos variables ($r = \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_x \cdot \sigma_y}$), es de $r = 0,909$ ($p - valor < 0,0001$) lo que corrobora la correlación entre estas dos variables. La concentración de radón en el interior parece aumentar de forma exponencial hasta llegar a los 20° en el exterior, que es la temperatura del interior de la cueva. A partir de este momento, la subida de la temperatura es mucho más marcada. Lo cual indica que cuando la temperatura exterior supera los 20°, y es superior a la interior, deja de existir corriente del aire hacia el exterior y el radón se queda estancado dentro de la cueva.

La relación entre la humedad en el exterior y la concentración de radón también parece indicar una correlación positiva, aunque en este caso menos fuerte. El coeficiente de correlación de Pearson entre este parámetro atmosférico y la concentración de radón es $r = 0,587$ ($p - valor = 0,003$).

La velocidad del viento presenta una débil correlación negativa con la concentración de radón, el coeficiente de correlación es $r = 0,429$ ($p - valor = 0,036$), lo que indica una influencia muy pequeña.

La precipitación parece no tener ninguna influencia, el coeficiente de correlación en este caso es de $r = 0,163$ ($p - valor = 0,447$).

Entre las diferentes variables atmosféricas estudiadas también existen correlaciones. Los meses que hay mayor temperatura, la humedad es superior ($r_{T-H} = 0,547$, $p - valor = 0,0003$) y la velocidad del viento es inferior ($r_{T-V} = -0,430$, $p - valor = 0,036$). Por lo que no podemos decir si la correlación de la humedad con el radón o de la velocidad del viento con el radón es tal como hemos indicado, o si esta influencia es debida tan solo a los cambios de temperatura.

Para hacer un estudio más detallado y que no se basara en medias mensuales donde los efectos que pueda provocar el clima en la concentración de radón se pueden diluir se han seleccionado algunos períodos más cortos.

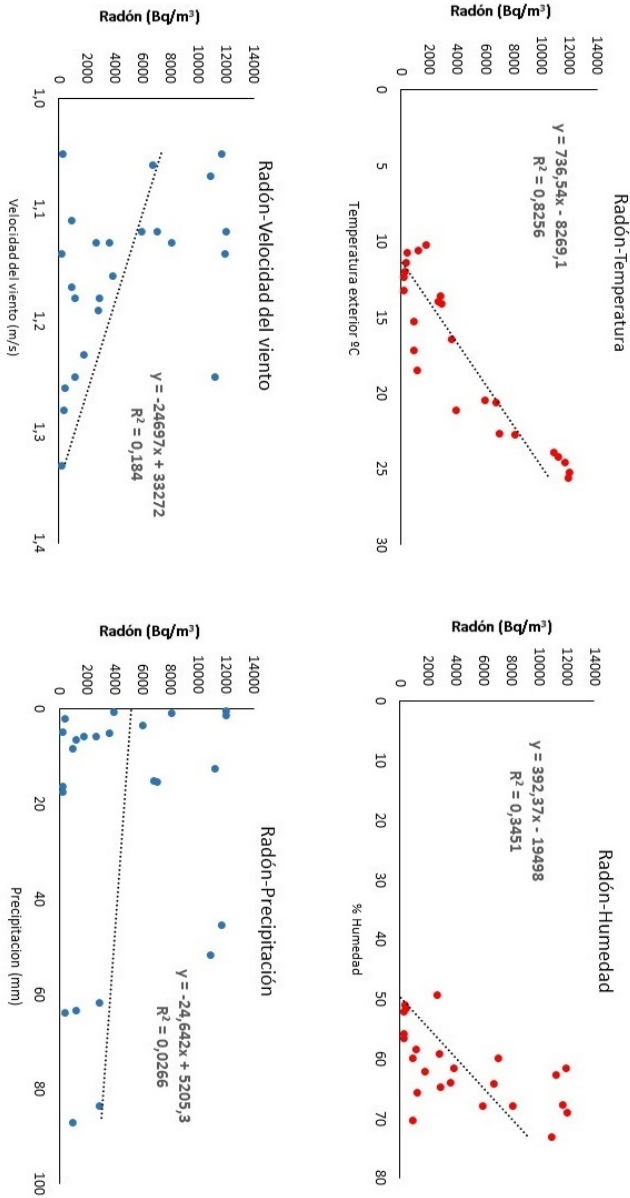


Figura 5.4: Correlación de las variables ambientales externas con el perfil de concentración de radón en el interior de la cueva.

5.3.1.1. Aumento de radón en la cueva en la transición primavera-verano

El cambio de temperaturas de la primavera a verano, que en la zona se produce en unos pocos días, provoca un gran aumento en las concentraciones de radón, que se mantienen altas y estables durante todo el verano.

En la figura 5.5 se puede ver que el hecho de que aumente la temperatura en el exterior produce un aumento de concentración de radón en el interior de la cueva. Cuando en el exterior se superan los 20° , que es la temperatura promedio que hay en el interior de la cueva, la subida de radón tiene una pendiente positiva muy pronunciada.

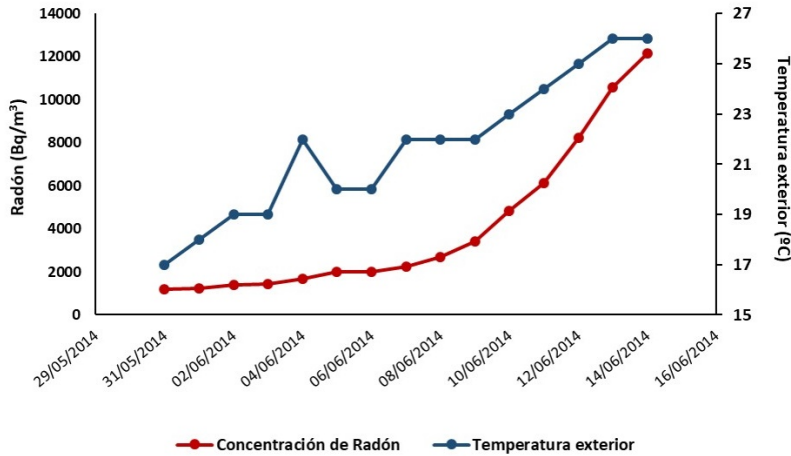


Figura 5.5: Subida de temperatura exterior y de la concentración de radón en el interior de la cueva en la transición primavera a verano.

Si analizamos la correlación de los parámetros atmosféricos con la concentración de radón en la transición primavera-verano, obtenemos una fuerte correlación positiva en el caso de la temperatura, con un coeficiente de correlación de $r = 0,888$ (p - valor $< 0,0001$), ver figura 5.6.

La correlación entre el radón y la velocidad del viento o las precipitaciones no han sido estudiados en este período debido a que no existían datos para obtener una buena estadística. La velocidad del viento fue más o menos constante y no hubo precipitaciones. Sin embargo, se ha añadido como nuevo parámetro

la presión máxima registrada durante esos días en el exterior de la cueva, que no se realizó con la evaluación mensual porque se consideró que la media de presión de todo el mes no podría reflejar ningún cambio. Aunque tampoco parece existir ninguna correlación utilizando la presión máxima diaria, tal vez este parámetro debería ser evaluado en pequeñas franjas horarias, ya que las variaciones en esta son pequeñas y en cortos períodos de tiempo.

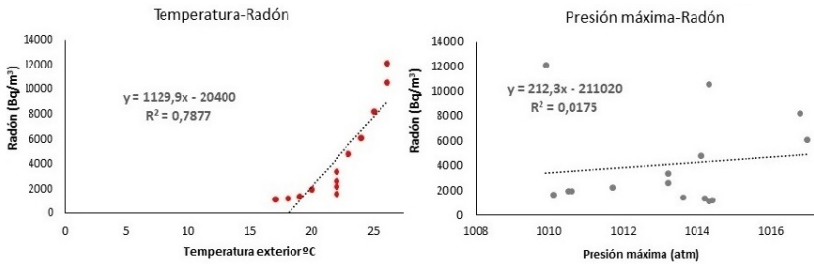


Figura 5.6: Correlación entre las variables meteorológicas y el radón en el cambio de estación de primavera a verano.

5.3.1.2. Descenso de radón en la cueva en la transición Otoño-Invierno

Si se representa, al igual que se ha hecho en el apartado anterior con la subida de radón en primavera, la bajada de temperatura en el exterior y la de la concentración de radón en el interior de la cueva en la transición del otoño al invierno se obtiene la figura 5.7, donde se observa que estas siguen un mismo patrón.

En los gráficos de correlación de la concentración de radón con las condiciones ambientales, figura 5.8, se puede observar la dependencia de esta con la temperatura y la precipitación. Una vez más se obtiene una correlación positiva fuerte con la temperatura, con un coeficiente de correlación $r = 0,780$ ($p - \text{valor} < 0,0001$).

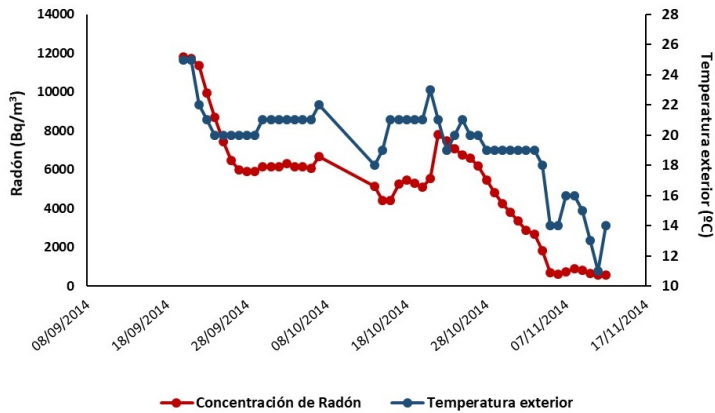


Figura 5.7: Descenso de la temperatura exterior y de la concentración de radón en el interior de la cueva en la transición del otoño al invierno.

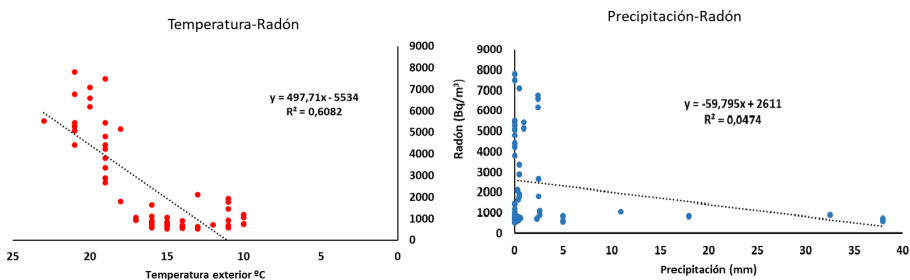


Figura 5.8: Correlación entre las condiciones meteorológicas y la concentración de radón en el cambio de estación de otoño a invierno.

Los estudios muestran que no existe correlación entre la cantidad de lluvia caída en el municipio de la Vall d'Uixò y la concentración de radón en la cueva ($r = -0,218$, $p\text{-valor} = 0,095$). Sin embargo, si se representan solo unos pocos días de los períodos en los que ha llovido y sus días posteriores, figura 5.9, se observa que la precipitación si que provoca un aumento en la concentración de radón en días posteriores, donde parece haber una diferencia de hasta cuatro días desde el pico de lluvia más alto hasta encontrar una concentración de radón máxima, que si no ha seguido lloviendo vuelve a descender. Este efecto no es tan notable en los meses fríos (diciembre) como en los meses más cálidos

(septiembre), ya que en los meses de invierno la cueva ventila y no se produce la acumulación que se produce en verano.

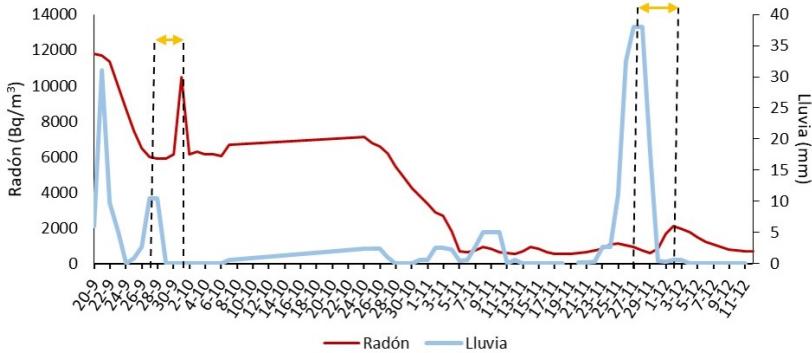


Figura 5.9: Efecto de la lluvia en la concentración de radón en el interior de la cueva.

5.3.1.3. Variaciones diurnas de la concentración de radón

Durante el estudio, no se observaron variaciones importantes en la concentración de radón que pudieran ser debidas a las diferencias entre el día y la noche. En las gráficas de la figura 5.10, se presentan los registros de radón con equipos electrónicos de unos pocos días durante dos períodos, unos días de verano, del 1 al 5 de Agosto, y unos días de invierno, del 1 al 5 de Diciembre. En los meses de verano la variación en los niveles de radón a lo largo del día y la noche es más marcada que en los meses de invierno en los que la cueva ventila durante todo el día. Aún así, en verano tampoco se encuentran tendencias que se puedan atribuir al día y la noche, ya que la bajada de las temperaturas en la zona durante la noche no es muy elevada. Pocas veces baja de los 20° y si lo hace es durante pocas horas, en las que la cavidad no renueva el aire.

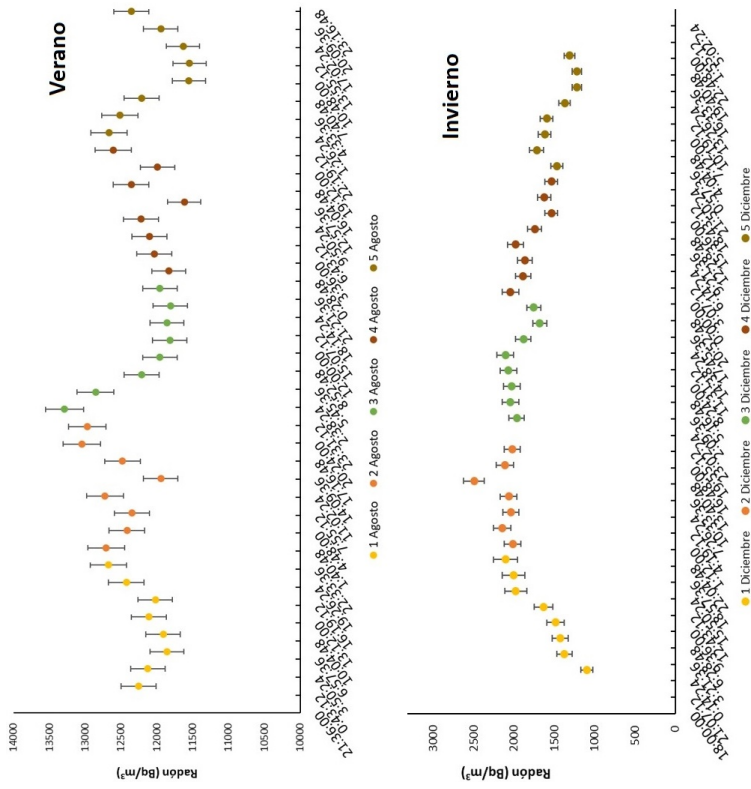


Figura 5.10: Variaciones diurnas de radón en verano e invierno.

5.4. Resultados de factor de equilibrio

En el año 2013 se midió el factor de equilibrio en cuatro jornadas no consecutivas. En los meses de invierno, febrero y noviembre, el factor de equilibrio estimado fue de $0,31 \pm 0,11$. Sin embargo, en el mes de mayo el factor que se encontró fue tan solo de $0,10 \pm 0,03$ y en agosto un factor medio entre estos dos de $0,21 \pm 0,07$. En vista de esta variación, durante el año 2014 se decidió medir este factor de equilibrio más veces, insistiendo en los meses de verano, para poder confirmar estos factores de equilibrio. Los resultados encontrados fueron menores que los encontrados en el 2013, llegando a ser de $F = 0,02$, inferior a los encontrados en la bibliografía en cuevas de tipo Kárstico, que varían de 0,04 a 0,95 [CSN12c].

En la tabla 5.4, se muestran todos los valores de factor de equilibrio medidos durante los años 2013 y 2014.

Si representamos los datos de factor de equilibrio junto con los datos de radón se puede ver que ambas magnitudes son inversamente proporcionales, figura 5.11.

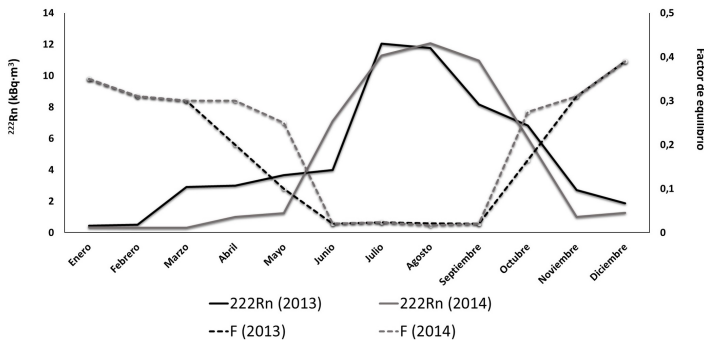


Figura 5.11: Relación inversa entre la concentración de radón y su factor de equilibrio.

5.4.1. Influencia de las condiciones ambientales

Los estudios de correlación del factor de equilibrio con las variables meteorológicas, figura 5.12, muestran influencia solo de la temperatura, encontrando

Tabla 5.4: Factores de equilibrio medidos en diferentes jornadas en el punto de muestreo EMB1.

Fecha	Factor de equilibrio
feb-13	0,31±0,11
may-13	0,10±0,03
ago-13	0,21±0,07
nov-13	0,31±0,11
mar-14	0,30±0,10
may-14	0,25±0,10
jun-14	0,020±0,006
jul-14	0,023±0,006
ago-14	0,016±0,006
sep-14	0,02±0,007
nov-14	0,31±0,11
dic-14	0,39±0,11

una correlación inversa de este con la temperatura que contrasta con la correlación directa que existía entre concentración de radón y temperatura. El coeficiente de correlación de Pearson es $r = -0,801$ (p -valor=0,002), negativo por tener una correlación inversa. Aunque aparentemente parece existir también una correlación negativa entre este factor de equilibrio y la humedad en el ambiente exterior, los estudios de correlación muestran que no es así, ($r = -0,410$, $p = 0,185$). Tampoco se han encontrado correlaciones significativas del factor de equilibrio con la velocidad del viento ($r = 0,284$, p -valor = 0,371) o con la precipitación ($r = 0,483$, p -valor = 0,112).

Una explicación a este comportamiento, tanto del radón como del factor de equilibrio, puede ser que al aumentar la temperatura en el exterior de la cueva, por encima de la temperatura del interior, el aire queda estancado en el interior de esta, no permitiendo la salida de radón. Este mismo aire estancado se enriquece en partículas en suspensión que forman agregados con los descendientes del radón ayudando así a precipitar y depositarse en superficies con mayor velocidad.

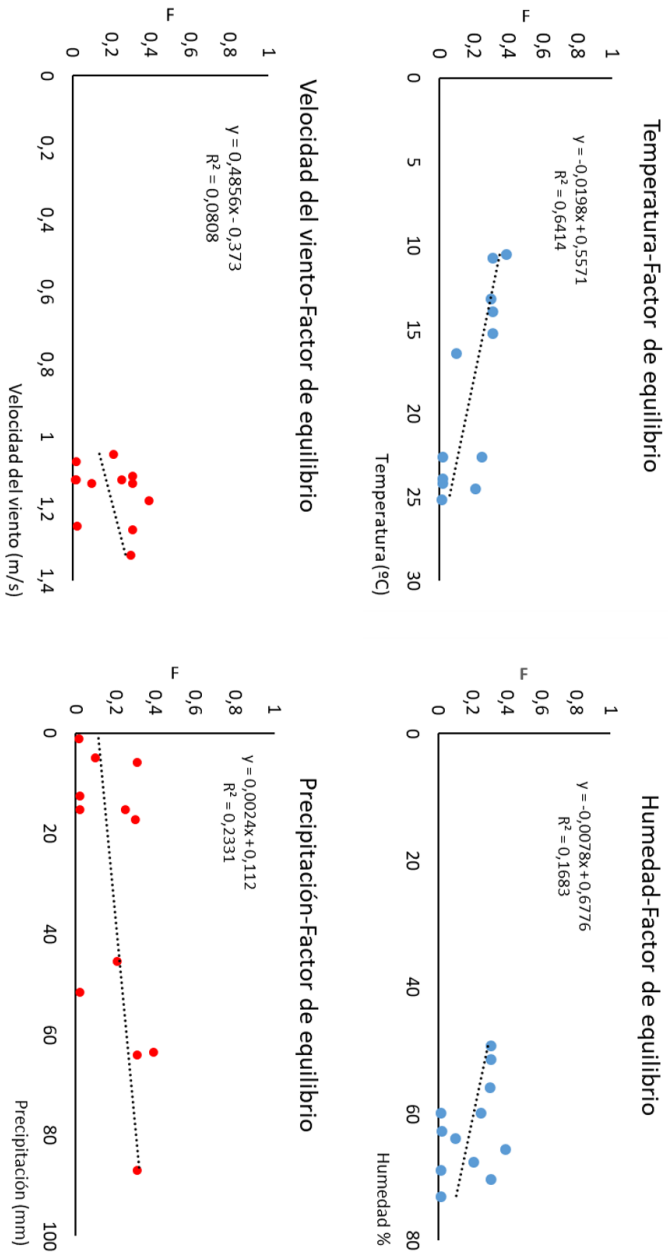


Figura 5.12: Correlación entre los factores de equilibrio y las variables meteorológicas.

5.5. Radón y otros radionúclidos en el agua de la cueva

Debido a que los períodos de desintegración de todos los isótopos de la cadena son menores que los del uranio, la concentración natural de uranio en las rocas y los suelos se encuentra en equilibrio secular con sus descendientes. Sin embargo las concentraciones de estos en el agua pueden ser muy variadas, debido a las interacciones que esta pueda tener con las rocas y los diferentes parámetros tanto físicos como químicos [Sco92].

Para intentar averiguar si el origen del radón era el agua del río, se midió este, y otros radionúclidos de la serie, anteriores y posteriores al radón (ver figura 1.1 de la introducción). Se tomaron muestras de agua en el mes de julio de 2013, una en el embarcadero 1 (EMB1) y otra en el embarcadero 2 (EMB2). Por un lado, se midió la cantidad de radón presente en las muestras. Por otro lado, se determinaron las abundancias de los isótopos de uranio (^{238}U y ^{234}U), isótopos anteriores al ^{222}Rn en su cadena radiactiva, y del polonio, ^{210}Po , último descendiente radiactivo de la cadena. Al correr el agua del río en abierto, el gas radón, que tiene preferencia por la fase gaseosa, pasa a la atmósfera, pero sus descendientes sólidos quedan disueltos en el agua, donde se desintegran hasta llegar a isótopos estables.

Las cantidades de ^{226}Ra , isótopo inmediatamente anterior al ^{222}Rn no fueron determinadas por no disponer del método apropiado para ello, tal vez habría sido de gran ayuda para comprender mejor el comportamiento.

Los resultados de estos análisis se muestran en la tabla 5.5.

Las concentraciones de radón medidas por centelleo líquido en muestras de agua del río de San Josep corresponden a valores inferiores al límite de detección del equipo ($LID < 1,2 \text{ Bq/L}$). Lo que indicó que, de ser este el origen del radón en el aire, el radón se transfería rápidamente de la fase acuosa a la fase gaseosa. Además, el agua del río es constantemente agitada por el paso de las barcas lo que favorecería este traspaso.

Como se observa las concentraciones de uranio son relativamente bajas, inferiores a 50 mBq/L , y comparables a aguas comerciales de embotelladoras españolas, que proceden habitualmente de manantiales subterráneos, donde las

actividades de uranio varían desde valores inferiores a los límites de detección de alrededor de 1 mBq/L hasta los 173 ± 71 mBq/L para el ^{234}U y $70,9 \pm 3,2$ mBq/L en el caso del ^{238}U [DF13].

Se encuentran ratios $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, de 3,4 y 4,2 en EMB1 y EMB2 respecti-

Tabla 5.5: Concentración de radón y otros radionúclidos en el agua del río que recorre la cueva.

	^{222}Rn (Bq/L)	^{210}Po (mBq/L)	^{234}U (mBq/L)	^{238}U (mBq/L)	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
<i>EMB 1</i>	< 1,2	$7,2 \pm 1,4$	$31,9 \pm 4,0$	$7,6 \pm 2,6$	4,2
<i>EMB 2</i>	< 1,2	$4,8 \pm 1,7$	$24,9 \pm 3,0$	$7,4 \pm 2,0$	3,4

vamente, habituales en aguas subterráneas, donde se suelen encontrar valores de entre 0,51 a 9,02 [Ali14]. Este desequilibrio puede ser explicado por el efecto «retroceso», que fue descrito en el apartado § 1.2.3. Cuando el ^{238}U se desintegra emitiendo una partícula alfa, su descendiente es propulsado en la dirección contraria a esta emisión, pudiendo desplazarse hacia zonas más externas en la estructura de los minerales, y quedarse en la superficie de los granos y/o en los huecos entre ellos, lo que hace que el ^{234}U se encuentre más disponible para ser solubilizado por el agua a su paso [Fle83]. Este mismo efecto de retroceso es experimentado por los siguientes radionúclidos emisores alfa de la cadena, ^{230}Th y ^{226}Ra , y a pesar de que la dirección de emisión y retroceso es aleatorio para cada desintegración, se podría decir que este efecto produce que estos radionúclidos puedan encontrarse también en zonas externas de la estructura del cristal donde puedan escapar fácilmente al agua o al aire y que la disposición de los átomos de ^{226}Ra , facilitaría que al desintegrarse en gas ^{222}Rn , este pudiera salir hacia los huecos y de las paredes [Fle82].

Las concentraciones de ^{210}Po encontradas fueron de $7,13 \pm 1,39$ y $4,83 \pm 1,74$ mBq/L, una actividad que se puede considerar bastante baja, si se tiene en cuenta que son aguas subterráneas. En España, las mismas aguas que se pusieron como comparación en el caso del uranio, muestran actividades de ^{210}Po de entre 1 – 46 mBq/L [DF13], similares a las de Estados Unidos que se encuentran por debajo de los 40 mBq/L [Por03] y otros lugares. Solo en terrenos muy ricos en uranio en zonas de Finlandia o Australia se alcanzan

valores de $16 - 19 \text{ Bq/L}$ [IAE17]. El hecho de hallar en el embarcadero 1 una concentración superior al embarcadero 2 podría indicar una disolución mayor de materiales por parte del agua del río con su paso, aunque esta diferencia no es muy marcada.

5.6. Implicaciones dosimétricas para el personal

5.6.1. Radón efectivo

Como se explicó en el apartado § 1.2.7.1, la legislación sobre radón propone unos límites de actividad de este a partir de los cuales hay que realizar acciones de remedio para la seguridad de los trabajadores, que actualmente es de $300\text{Bq}/\text{m}^3$ [CE514, CSN12a]. Pero estas cantidades están calculadas suponiendo un factor de equilibrio en la instalación es $F = 0,4$ y 2000 de trabajo horas anuales.

Las concentraciones de radón que se han registrado en esta instalación han sido muy variables, así como los factores de equilibrio, por lo que se ha calculado las concentraciones efectivas mes a mes durante el año 2014, aplicando las correcciones al factor de equilibrio y a las horas, como se explicó en el apartado § 4.1.2.

Los resultados de concentración de radón efectivo, para el trabajador que más horas ha registrado durante el año 2014 (810 h) en el interior de la cueva se muestran en la gráfica 5.13, junto a la concentración de radón. En esta gráfica se observa que debido a la influencia del cambio de factor de equilibrio y sobre todo a que el total de horas no es el mismo mensualmente, las concentraciones efectivas no siguen el mismo perfil que sigue la concentración de radón, y supera los $300\text{Bq}/\text{m}^3$ solo en los meses de abril, julio y diciembre.

La concentración de radón media durante el año 2014 fue de $4,4 \pm 0,9\text{kBq}/\text{m}^3$, mientras que en concentración efectiva este número desciende a aproximadamente $225\text{Bq}/\text{m}^3$.

5.6.2. Estimación de dosis

Las dosis para los trabajadores han sido estimadas a partir de las concentraciones de radón medidas en la cueva y del tiempo de permanencia de los trabajadores en esta, tal como se explicó en el apartado § 4.1.1. Se ha realizado una comparación entre las dosis obtenidas con diferentes factores de conversión a dosis (DCF) y las recomendaciones del ICRP. Además se ha tenido en cuenta el factor de equilibrio entre radón y descendientes recomendados en la bibliografía ($F = 0,4$) y los factores de equilibrio reales estimados en la insta-

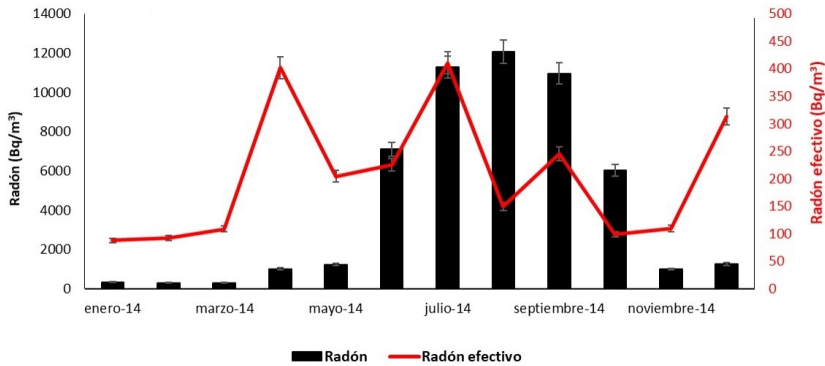


Figura 5.13: Concentración de radón y radón efectivo calculado para el trabajador que más horas ha registrado en el interior de la cueva.

lación. También se ha calculado la dosis valorando la permanencia real de los trabajadores en el interior y una permanencia de 2000 h, que es la recomendada en la bibliografía para trabajadores que ocupan toda su jornada laboral en el interior de la cueva o instalación. Todas estas dosis pueden verse en la tabla 5.6.

Las dosis estimadas suponiendo un $F = 0,4$ y un tiempo de permanencia de $t = 2000$ h para $DCF = 24$ mSv/WLM y $DCF = 5$ mSvWLM⁻¹ son 137 mSv y 30 mSv respectivamente. Cuando se consideran los factores de equilibrio medidos en lugar del factor de equilibrio $F=0.4$ las dosis estimadas disminuyen a 17 mSv y 3,5 mSv para cada uno de los dos DCF , respectivamente.

Si además se tienen en cuenta los tiempos de permanencia reales en el interior de la cueva, estas dosis disminuyen a 5,1–6,4 mSv para los trabajadores que pasan mayor tiempo y menor tiempo en la instalación, respectivamente, con un $DCF = 24$ mSv/WLM y a 1,2 – 1,7 mSv para $DCF = 5$ mSv/WLM.

Como vemos la medida del factor de equilibrio es clave para calcular las dosis reales ya que el tabulado puede estar muy lejos de la realidad y afectar enormemente a la estimación de la dosis, tanto por sobre-estimación como infra-estimación.

En la gráfica 5.14 se ha representado la dosis mes a mes de un trabajador al azar para las diferentes condiciones para las que ha sido calculada y con un

$DCF = 5 \text{ mSv/WLM}$. Si tenemos en cuenta un factor de equilibrio $F = 0,4$ y $\Delta t = 170 \text{ h}$, la dosis máxima recibida por este trabajador en un mes es de $6,5 \text{ mSv}$, en agosto, que es cuando mayor concentración de radón hay en el interior de la cueva. Sin embargo, si tenemos en cuenta el factor de equilibrio medido y el tiempo de permanencia real, esta misma dosis en el mes de agosto pasa de ser de $0,12 \text{ mSv}$. De forma contraria, en el mes de Diciembre, que es cuando las concentraciones de radón son las mínimas anuales, la dosis asumida por este mismo trabajador es de $0,20 \text{ mSv}$.

Los mismo ocurre con las dosis que podrían ser recibidas por los turistas. Las dosis máximas y mínimas que podrían ser recibidas por un turista de la cueva, en los 40 min que dura una visita, se muestran en la tabla 5.7 para diferentes DFC y factores de equilibrio. Para un factor de equilibrio $F = 0,4$, los valores de dosis son máximos, en el mes de julio, cuando la concentración de radón es la más alta, y mínimos en febrero, cuando la concentración de radón es menor. Sin embargo, si utilizamos los factores de equilibrio reales obtenemos unos resultados muy diferentes. Las dosis que podrían ser recibidas por un turista serían máximas en el mes de diciembre, ya que aunque la concentración de radón es de las más bajas, el factor de equilibrio toma el valor más alto de los estimados. Lo cual evidencia una vez más la necesidad de medir el factor de equilibrio para asignar las dosis en este tipo de lugares.

Tabla 5.6: Dosis estimadas para los trabajadores de la cueva teniendo en cuenta diferentes DCF , F , tiempo de permanencia.

DCF (mSvWLM^{-1})	Dosis (mSv) $F = 0,4$ $\Delta t = 170 \text{ h}$	Dosis(mSv) F_{medido} $\Delta t = 170 \text{ h}$	Dosis(mSv) F_{medido} $\Delta t = real$
24	137	17,05	5,1 – 6,4
5	30	3,50	1,2 – 1,7

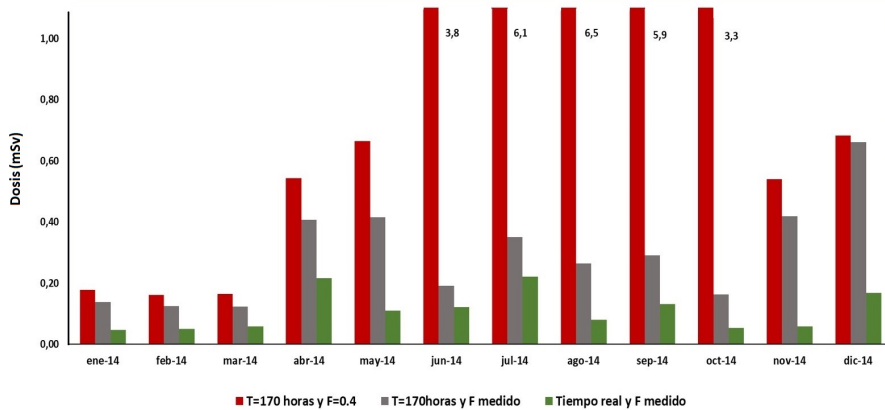


Figura 5.14: Dosis recibidas por un trabajador mes a mes durante el año 2014 ($DCF = 5 \text{ mSv/WLM}$).

Tabla 5.7: Dosis estimadas un visitante teniendo en cuenta diferentes DCF.

DCF (mSvWLM^{-1})		Dosis (μSv)	
		$F=0.4 \Delta t = 40 \text{ min}$	$F \text{ medido}, \Delta t = 40 \text{ min}$
24	Mínimo	3,1 (Febrero)	3,5 (Marzo)
	Máximo	120 (Julio)	20 (Diciembre)
5	Mínimo	0,6 (Febrero)	0,7 (Marzo)
	Máximo	30 (Julio)	3,8 (Diciembre)

5.7. Conclusiones

A pesar de que la cueva de Sant Josep se encuentra en una zona donde no suele haber grandes cantidades de radio y uranio en suelo, las concentraciones anuales de radón medidas en esta cueva son muy elevadas, $4,8 \pm 1,0 \text{ kBq/m}^3$ y $4,4 \pm 1,0 \text{ Bq/m}^3$ en 2013 y 2014, respectivamente.

La cueva presenta una variación estacional muy marcada con niveles mínimos de alrededor de 400 Bq/m^3 en los meses más fríos y una alta acumulación de hasta 12 kBq/m^3 de radón en los meses de verano. Esta alta actividad en verano solo es superada en España, según lo estudiado hasta día de hoy, por la Cueva de Castañar de Ibor en Cáceres, donde se alcanzan hasta $37,8 \text{ kBq/m}^3$, [AG15], y la Sima del Vapor, en Alhama de Murcia, donde se han llegado a detectar 47 kBq/m^3 [PL16, VAP]. La primera de ellas es una cueva en una zona granítica, y la segunda una sima de más de 80m de profundidad donde las actividades encontradas se asocian a la presencia de aguas termales y una actividad sísmica somera.

El comportamiento estacional, con máximos en verano y mínimos en invierno, es similar al de algunas cavidades como la Cueva de Nerja [Due11], la Cueva de las Maravillas [Fue15], o la cueva de Postojona [Gre14] y es inverso a otras como la propia Castañar de Ibor, ya nombrada, Altamira, en Cantabria, o Shawan, en China [Lar06, Lar05, Wan19, Gre14].

La ventilación del interior de la cueva, regida por las condiciones ambientales, es la responsable de este comportamiento. Los estudios de correlación entre los parámetros meteorológicos exteriores y la concentración de radón muestran que la temperatura exterior, o mejor dicho la diferencia de temperatura entre el exterior y el interior, es la principal responsable del comportamiento estacional del radón. Cuando en el exterior de la cueva la temperatura es inferior a la del interior, la densidad del aire caliente hace que este salga hacia el exterior por convección, por lo que la cueva realiza intercambio de aire con el exterior. Sin embargo, cuando la temperatura exterior es mayor que la temperatura interior, el aire de la cueva se queda estancado, produciendo una gran acumulación de radón. La diferencia es más marcada cuando en el exterior la temperatura supera los 20° , que es la temperatura constante del interior de la cavidad. Este tipo de comportamiento es típico de cuevas con la geomorfología que tiene la gruta de

Sant Josep, con una única entrada y un recorrido horizontal [Bah08, Wan19].

Se han encontrado variaciones temporales en los factores de equilibrio, desde los 0,02 en los meses de verano hasta 0,39 en invierno. En verano el factor de equilibrio es de los más bajos referenciados en la bibliografía para este tipo de lugares y además la tendencia anual de este factor es contraria a la del radón, es decir, cuando la concentración de radón es máxima el factor de equilibrio es mínimo. Este comportamiento no suele ser el habitual, ya que el factor de equilibrio suele aumentar con la concentración de radón.

Este hecho podría ser explicado por fenómenos de ionización del ambiente. Lógicamente, al existir mucho más radón en el ambiente este es más ionizante lo que hace que se generen iones negativos, de vapor de agua o de otros gases atmosféricos, con los que los descendientes del radón, iones positivos de forma libre o en forma de pequeños cluster, se neutralizan [Pag03]. Al neutralizarse los iones positivos, la tasa de combinación con otras partículas disminuye, es decir, la mayoría de los descendientes se encuentran sin formar agregados, que depositan a mayor velocidad. Se ha observado que la velocidad de deposición aumenta significativamente en ambientes donde la concentración de radón es superior a 10 kBq/m^3 [Chu96].

Además, la forma de la cueva, con muchos tramos de estrechos pasillos y bajas paredes y techos, añadido a las formaciones que hay en estas, hace que exista una gran superficie de deposición en función del volumen que ocupa, lo que favorece que los descendientes del radón, adheridos o no partículas, se depositen con facilidad [Esp15].

En menor medida, la mayor afluencia de público en los meses de verano, especialmente en julio y agosto, también podría hacer descender este factor de equilibrio, ya que las personas también actúan como superficie de deposición, llevándose los iones cargados de descendientes del radón adheridos a la ropa y el pelo.

En este tipo de cuevas de origen kárstico, la causa de que exista ^{222}Rn suelen ser los sedimentos arcillosos que recubren los suelos, en este caso también acumulados en el fondo del río subterráneo, y a la roca que ese encuentra por detrás de las deposiciones calcáreas, ya que la roca caliza no suele presentar elevadas cantidades de ^{226}Ra [CD17]. La formación de la cueva, que se produce al disolverse los materiales calcáreos, puede hacer que precipiten los materiales

no solubles en agua [Fue15].

Las aguas que se filtran a la cueva y forman el río podrían ayudar a transportar el radón de la roca hacia a la cueva, ya que se observa, que unos días después de haber precipitaciones se produce un pequeño aumento del gas en el interior de esta, mayor cuanto mayor es la cantidad de lluvia. Aunque no parece ser este el origen principal del radón, solo una contribución de poca importancia, apreciable cuando la precipitación es elevada y hay menor ventilación de la cavidad en los meses más cálidos.

El análisis del agua del río muestra una baja concentración de uranio, lo que también indica que esta no es el principal origen del radón. Sin embargo, si que se observa un gran desequilibrio en los isótopos $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, lo cual da a entender que el agua se enriquece en descendientes de ^{238}U a su paso por las rocas.

Tampoco se han encontrado grandes concentraciones de ^{210}Po en el agua del río, lo que sugiere que de depositarse el radón y sus descendientes en esta, la circulación del agua impide la acumulación de este radionúclido, aunque no hemos analizado su presencia en los sedimentos, donde podría estar acumulándose junto al ^{210}Pb .

A pesar de las altas concentraciones de gas radón encontradas en el interior de la cueva, las concentraciones efectivas y las dosis asociadas a los trabajadores no son tan elevadas como cabría esperar, debido a que la jornada laboral no implica estar en el interior de la cueva 8 horas al día y los factores de equilibrio, en los momentos en los que la cantidad de radón es mayor, son muy bajos. Solo en el peor de los casos, el trabajador que más dosis ha recibido durante el año 2014 y con un DCF máximo ($DCF = 24$) supera la dosis máxima de 6 mSv recomendada [CSN12a], por lo que se aconsejó en su momento que se realizara una mayor rotación de trabajadores y que estos pasaran el menor tiempo posible dentro de la cueva, entrando solo en el momento de realizar las visitas y sin esperar en el interior entre ellas.

Las dosis calculadas con los diferentes factores de conversión a dosis son muy diferentes, ya que el último factor recomendado en el año 2017 ($DCF = 24$) es casi 5 veces mayor al anterior. Estos factores se basan principalmente en el tamaño de las partículas que haya en suspensión. Se podría decir que el factor de equilibrio tabulado por esta recomendación de conversión a dosis

dista mucho del medido en esta cueva, pero no conocemos las características de las partículas que hay en la cueva por lo que no podemos saber, sin haberlo medido, si el DCF considerado debería ser superior o inferior al tabulado.

A pesar de ello, podríamos hacer la hipótesis de que al ventilarse menos la cueva en verano puedan acumularse más partículas, por lo que se formarían agregados con mayor facilidad y estos serían de mayor tamaño, lo que haría que la fracción libre de radón fuese menor [Che97] y, por tanto, inferior el DCF, y lo contrario podría ocurrir en invierno [Bez12]. Sería necesario medir la cantidad y el tamaño de las partículas en diferentes temporadas del año, como se ha hecho con el factor de equilibrio, para estimar la dosis con una mayor precisión.

Capítulo 6

Concentraciones de gas radón en la Cueva del Rull, La Vall d'Ebò

6.1. Introducción

En este apartado se presentan las concentraciones de radón que se han medido en la Cueva del Rull durante el año 2013, así como los factores de equilibrio y las dosis asociadas a las trabajadoras que realizan las visitas guiadas. Las actividades de radón encontradas superan los 300 Bq/m^3 en todos los meses del año, que son mínimas en invierno y llegan hasta 3 kBq/m^3 durante los meses de verano. También se han encontrado variaciones estacionales en los factores de equilibrio, con la misma tendencia que el propio gas radón, mínimos en invierno y máximos en verano.

6.1.1. Situación y descripción general de la cueva

La Cueva del Rull se encuentra situada en el término municipal de La Vall d'Ebò, en la provincia de Alicante (38.811267,-0.17779), entre sierras y barrancos que forman los valles del interior de la provincia, como se representa en el mapa de la figura 6.1, donde además de la Cueva del Rull se encuentran numerosas cuevas y simas. El terreno en el que se encuentra situada tiene una morfología y litografía muy compleja, formada principalmente en roca caliza y arcillas del período cretácico. La formación de la cueva se debe tanto a la disolución de sus componentes calcáreos por la acción del agua como a hundimientos parciales, debidos a la presencia de una falla transversal a escasos metros de ella. (<https://lavalldebo.org/va/la-cova-del-rull/> [vd])

La cueva se encuentra durante todo el año a una humedad constante que ronda el 100 %, ya que está todavía en formación. Las temperatura en el interior de la cueva es de $16,0 \pm 0,5^{\circ}$, prácticamente constante durante todo el año.

La cueva se explota de forma turística con visitas guiadas. La visita consta de un recorrido de una longitud de 220 m y un desnivel de -19 m , a través de un sistema circular creado con escaleras y barandillas que impiden que el personal o los turistas modifiquen el terreno al pisarlo, como se puede ver en la figura 6.2. La cueva es más profunda que la altura a la que se visita y sus dimensiones reales se desconocen, parece ser de gran profundidad pero no está comprobado por dificultades espeleológicas. Todo parece indicar que las aguas que filtra se conducen al río Ebò, a menos de 1 km de distancia, que posteriormente desemboca en el río Girona, y del que se realiza la potabilización de agua en el municipio de La Vall d'Ebò para su consumo.

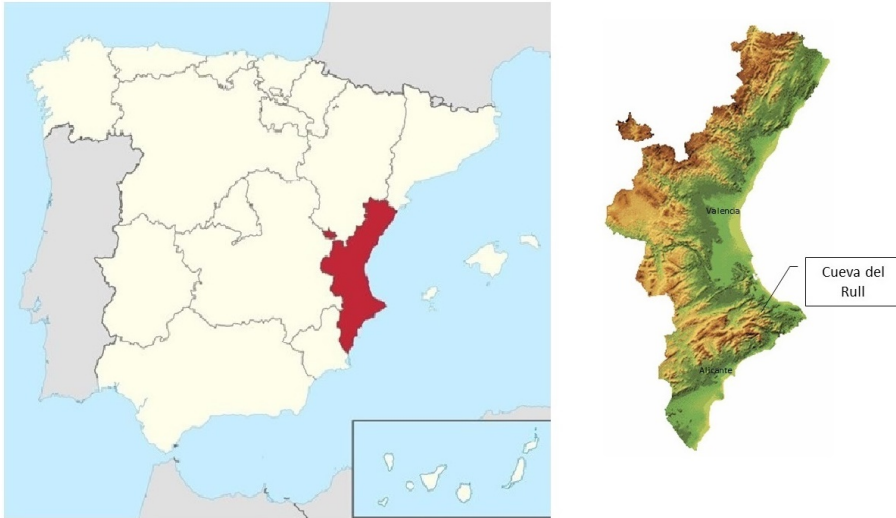


Figura 6.1: Situación Cueva del Rull.



Figura 6.2: Imagen del interior de la Cueva del Rull.

Imagen obtenida de:

<http://www.cuevasturisticas.es/imagenes-ap/cuevas//thumb/cuevadelrull.jpg>

6.2. Metodología del estudio

6.2.1. Tipo y densidad de detectores utilizados

El aire de la cueva fue monitoreado con un equipo RSCOUT durante el año 2013, desde febrero hasta diciembre. Durante el mes de enero, el recinto se encuentra cerrado y sin visitas turísticas, por lo que se consideró la concentración nula.

El equipo se situó a mitad del recorrido de la visita, en la parte opuesta a la entrada de la cueva, en una plataforma dispuesta para tal efecto. Además de este equipo, para estudiar la homogeneidad de la cueva, se dispusieron detectores pasivos de tipo cerrado CR39, junto al detector electrónico y por el resto del recorrido. Sin embargo, la mayoría de estos detectores desaparecieron, no sabemos si por vandalismo o por bajadas de agua. Además, debido a la elevada humedad en la cueva, muchas veces se han encontrado mojados, incluso llenos de agua, por lo que sus medidas han sido desestimadas.

El detector que se encontraba junto al equipo RSCOUT ha podido ser recuperado en más ocasiones, sin embargo, muchas de ellas también mojado, y ha registrado concentraciones inferiores a las recogidas por el RSCOUT, como se observa en la figura, 6.3, por lo que para el cálculo de ^{222}Rn efectivo y las dosis que debíamos asociar a los trabajadores se han utilizado los datos de los equipos electrónicos.

El factor de equilibrio se midió con la combinación de equipos electrónicos Doseman y Doseman Pro, como se explicó en el apartado sobre el cálculo del factor de equilibrio § 1.2.4.1, en cuatro visitas en diferentes períodos del año.

Adicionalmente se tomó agua del río Ebò, y del agua potable del pueblo de La Vall d'Ebò para analizar la presencia de radón, uranio y polonio en estas.

6.3. Resultados de actividad de radón

La actividad media de radón en la cueva durante todo el período de medida (febrero-diciembre) es de $1,8 \pm 0,8 \text{ kBq/m}^3$. La concentración del gas es máxima en verano, llegando cerca de los 3 kBq/m^3 , y mínima en los meses de invierno, cuando se encuentran actividades de $0,9 \text{ kBq/m}^3$. En la gráfica 6.3 se representan las concentraciones de radón mes a mes. Para estudiar este comportamiento, en los siguientes apartados se ha estudiado la influencia de las condiciones ambientales exteriores en la concentración de radón a través de análisis de correlación de Pearson.

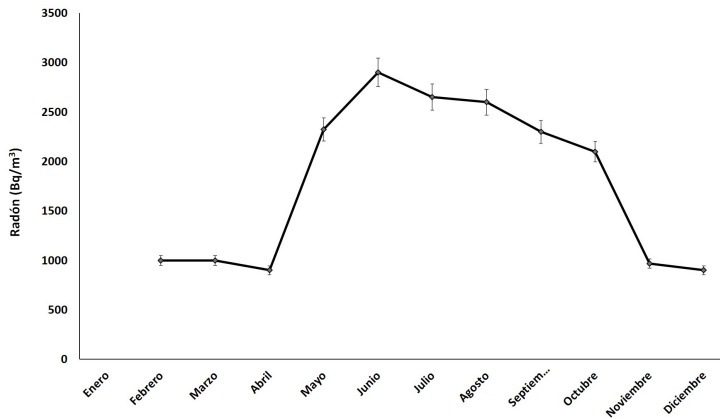


Figura 6.3: Perfil anual de concentración de radón en la Cueva del Rull.

6.3.1. Influencia de las condiciones ambientales

Para estudiar la influencia de las condiciones ambientales en la concentración de radón en el interior de la cueva se han utilizado los datos meteorológicos de la estación más cercana encontrada en la Agencia Estatal de Meteorología © AEMET, en el municipio de Jávea, Alicante.

En la figura 6.4 se representan las temperaturas máximas, la velocidad máxima del viento y la concentración de radón, dividida por 100 para que se encontrara en la misma escala y la gráfica sea más visible, en todo el período de medida. En ella se observa que los perfiles de radón y temperatura exterior

son similares, e inversos, a la cantidad de lluvia y la velocidad del viento.

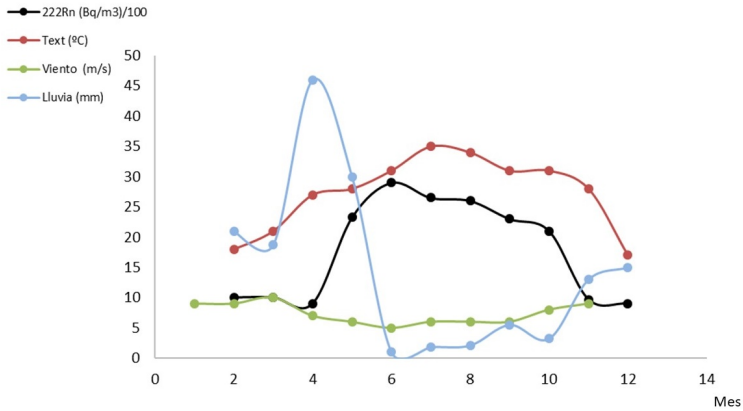


Figura 6.4: Perfil de radón y condiciones climáticas en la Cueva del Rull.

En el estudio de correlaciones realizado, figura 6.5, se encontró correlación positiva con la temperatura y negativa con la velocidad del viento. Los estudios de correlación Pearson confirman estas correlaciones con la temperatura ($r = 0,804$, $p = 0,002$) y la velocidad del viento ($r = -0,926$, $p = 0,00004$). Es decir, la cantidad de radón aumenta cuando hace más calor en el exterior de la cueva y la velocidad del viento es menor. Lo cual indica que la cueva en invierno se ventila naturalmente tanto por corrientes de convección como por la circulación de aire que pueda darse a través de entradas y grietas. Sin embargo en los meses de verano, al ser la temperatura exterior superior a la interior el aire se queda estancado dentro, y la cueva solo ventila, en caso de hacerlo, por las corrientes de aire que puedan entrar por aberturas o grietas.

Se ha encontrado también una pequeña correlación negativa con la precipitación media, ($r = -0,614$, $p = 0,045$), pero teniendo en cuenta que las influencias podrían ser en intervalos cortos de tiempo y no en meses completos, no se puede establecer una correlación real.

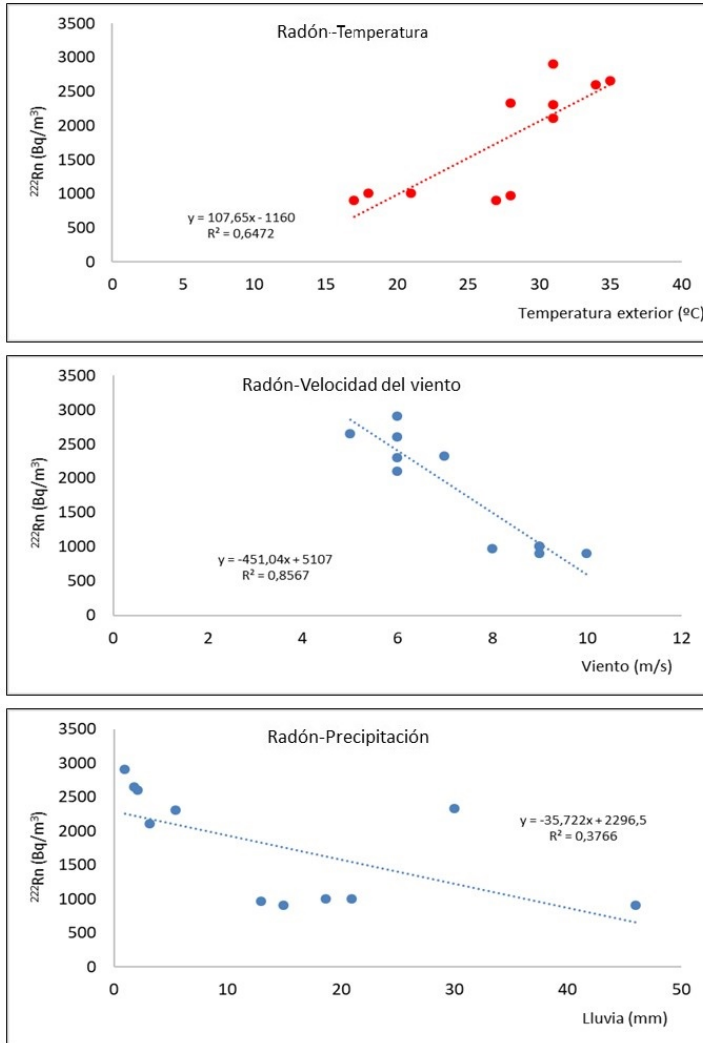


Figura 6.5: Correlación de los parámetros meteorológicos exteriores con la concentración de radón.

6.3.2. Variaciones diurnas de la concentración de radón

En la gráfica 6.6 se representan las concentraciones de radón medidas en diferentes jornadas a lo largo del un día durante unos pocos días del invierno, época en la que se ha observado una ligera tendencia diurna.

Los máximos de radón registrados son, en casi todos los casos, a primeras horas de la mañana, entre las 9 : 00 y las 12 : 00, y últimas de la tarde, entre las 20 : 00 y las 22 : 00, teniendo lugar los mínimos en las horas intermedias. Esta variación, podría ser debida a cambios en la presión barométrica, ya que parece variar con lo que se conoce como marea barométrica diaria, que se caracteriza por tener un ligero aumento de presión a las 10 y las 22 horas y una disminución a las 4 y 16 horas. Aunque no se ha podido realizar un estudio estadístico por no disponer de datos adecuados para ello, ya que la estación meteorológica más cercana se encuentra en un municipio a nivel del mar, Jávea, donde la presión puede ser muy diferente a la que se podría observar a la altura a la que se encuentra la cueva.

Aunque esta variación diurna también podría ser debida al simple hecho de abrir y cerrar la cueva para las visitas y/o condiciones introducidas por la presencia de los visitantes, ya que se son las horas a las que abre la cueva al público, y los cambios son más apreciables durante el día. Sin embargo, en los meses de verano no se ha observado esta tendencia, a pesar de estar más concurrida.

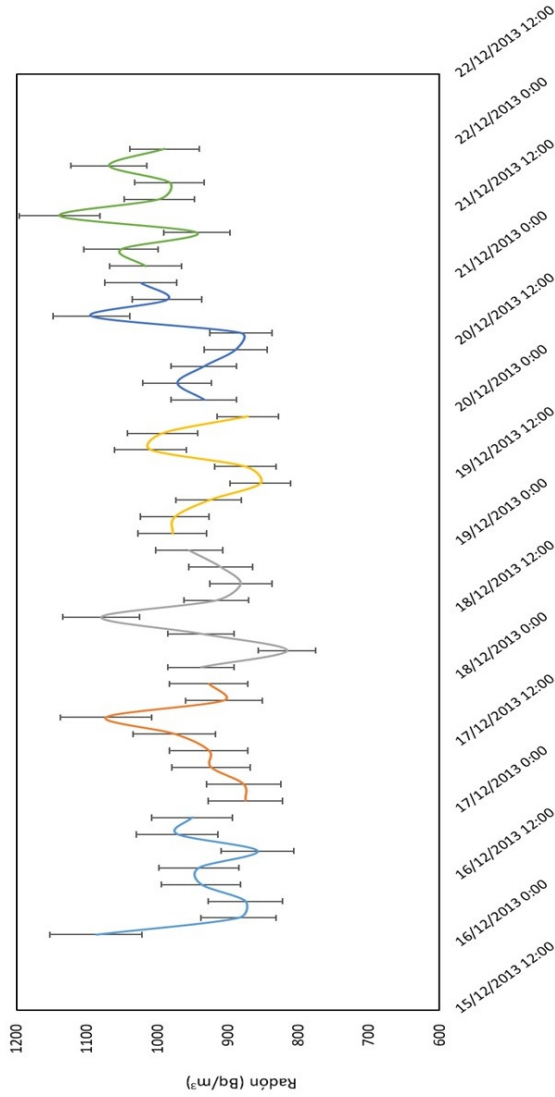


Figura 6.6: Variaciones diurnas de la concentración de radón en la cueva del Rull.

6.4. Resultados de factor de equilibrio

El factor de equilibrio se midió en cuatro visitas en los meses de abril, junio, agosto y noviembre. Como se puede observar en la tabla 6.1, existe una variación en este, igual que en la concentración de radón y con la misma tendencia, con valores máximos en verano de hasta 0,45 y mínimos en los meses de invierno, que llegan a ser un 50% de los anteriores.

Tabla 6.1: Factores de equilibrio en la Cueva del Rull.

Mes	F
Abril	$0,20 \pm 0,06$
Junio	$0,34 \pm 0,03$
Agosto	$0,45 \pm 0,04$
Noviembre	$0,22 \pm 0,06$

A pesar de tener pocos datos se han realizado los análisis de correlación del factor de equilibrio con las condiciones climatológicas exteriores, los resultados de estos establecen una alta dependencia del factor de equilibrio con la temperatura exterior ($r = 0,996$), siendo esta correlación incluso mayor que con la concentración de radón ($r = 0,757$). También existe una pequeña correlación, en este caso positiva, con la velocidad del viento ($r = 0,743$). Como se ha visto en el apartado anterior, esta correlación era muy significativa con la concentración de radón, en este caso de forma negativa, es decir a mayor velocidad del viento en el exterior la concentración de radón era inferior, lo cual parece indicar que existen corrientes de aire en el interior que vienen de fuera y son capaces de llevarse parte del radón, sin embargo sus descendientes sólidos permanecen en el aire de la cueva, por lo que aumenta el factor de equilibrio, este hecho podría ser debido a la gran humedad que hay en la cueva, ya que los descendientes sólidos pueden estar formando agregados con las partículas de agua que hay en el ambiente, y permanecer en suspensión con el vapor de esta.

No obstante, para confirmar esta hipótesis se necesitaría un mayor número de datos que permita realizar análisis estadísticos más fiables.

6.5. Radón y otros radionúclidos en el agua de la Cueva

En el mes de Noviembre de se recogieron dos muestras de agua, una muestra de agua potable del municipio de La Vall d'Ebò de la que se analizó el contenido de radón, y una muestra del río Ebò a su paso por el municipio a menos de 1 km de la cueva, de la que se analizaron además del contenido de radón, el contenido de uranio y de polonio. Los resultados se muestran en la tabla 6.2.

El agua recogida en el río Ebò, así como en el agua potable del municipio de La Vall d'Ebò dieron resultados de radón por debajo del límite de detección al medirlos mediante la técnica del centelleo líquido ($LID < 1,2$ Bq/L). Lo cual era de esperar al encontrarse esta ya diluida en el río y en abierto.

Tabla 6.2: Radón y otros radionúclidos en el agua de la cueva.

	^{222}Rn	^{210}Po	^{234}U	^{238}U	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
	Bq/L	mBq/L	mBq/L	mBq/L	
Río Ebo	<1,2	$7,6 \pm 2,6$	$10,9 \pm 1,4$	$10,4 \pm 1,4$	1,05
Agua Potable	< 1,2	$7,4 \pm 2,0$			

La concentración de uranio en el agua del río es característica de aguas de río de estas zonas, en las que no existe un gran contenido de uranio en las rocas, por ejemplo en el agua del río Júcar, cercano al Ebò en sus últimos tramos, estas concentraciones varían entre 7 – 29 mBq/L y 13 – 39 mBq/L para el ^{234}U y ^{238}U , respectivamente [RA95]. No existe además ninguna diferencia entre el contenido de estos dos isótopos, por lo que se pueden considerar en equilibrio. El río nace pocos kilómetros más arriba del lugar donde se han tomado las muestras y va ganando caudal por infiltraciones de diferentes simas que existen, pero no parece que disuelvan grandes cantidades de radionúclidos a su paso.

El contenido de ^{210}Po en el agua del río y en el agua potable del municipio es el mismo. En aguas de río el contenido de este radionúclido suele ser bastante

bajo y variable en las diferentes temporadas del año, dependiendo de la deposición atmosférica que se produzca, de entre 1 – 17 mBq/L[IAE17], niveles entre los que se encuentra el agua analizada (6.2). Por lo que no se puede concluir que exista o no deposición de ^{210}Po en este agua al pasar por la cueva.

6.6. Implicaciones dosimétricas para el personal

6.6.1. Radón efectivo

Se ha calculado el radón efectivo inhalado por las guías turísticas de esta cueva durante las horas de permanencia reales, tal y como se explicó en el apartado § 1.2.7.1, ya que esta cueva no es muy visitada y las horas anuales que las trabajadoras pasan en su interior distan enormemente de las 2000h para las que se estima la concentración de radón límite de 300 Bq/m^3 . Además, como se ha visto, el factor de equilibrio encontrado es variable. Solo en verano es algo superior al marcado en la legislación de $F = 0,4$ con un valor de $F = 0,45$ y el resto de los meses este factor es un 50 % inferior, $F = 0,20 - 0,22$, lo que hace que el factor de equilibrio medio encontrado en la cueva sea de $F = 0,28$.

La concentración de radón media durante el año 2013 fue de $1,8 \pm 0,8 \text{ kBq/m}^3$, mientras que en concentración efectiva este número desciende a $213 \pm 63 \text{ Bq/m}^3$. Los valores de radón efectivo junto a la concentración de radón mes a mes se muestran en la gráfica 6.7. Aunque la media de radón efectivo no supera los 300 Bq/m^3 , se observa que es mayor en los meses de verano, llegando hasta los 1000 Bq/m^3 en el mes de agosto, ya que es el mes que la concentración de radón, así como el factor de equilibrio, son mayores. Además la cueva recibe más visitantes, por lo que el tiempo que las trabajadoras pasan en el interior también es superior en estos meses, aunque es alrededor de un tercio de las 170h mensuales que supondrían una jornada laboral completa.

6.6.2. Estimación de dosis

Las dosis para trabajadoras y turistas han sido estimadas a partir de las concentraciones de radón encontradas en la cueva, tal como se explicó en el apartado §4.1.1. Para mostrar las diferencias de las distintas recomendaciones del ICRP a lo largo de los años, han sido calculadas con los últimos dos factores de conversión a dosis (DCF). Además, se ha tenido en cuenta el factor de equilibrio entre radón y descendientes recomendado en la bibliografía, $F = 0,4$, y los factores de equilibrio medidos en diferentes épocas del año. También se han calculado las dosis valorando la permanencia real de los trabajadoras en el interior y una permanencia de 2000 h, que es la recomendada en la bibliografía

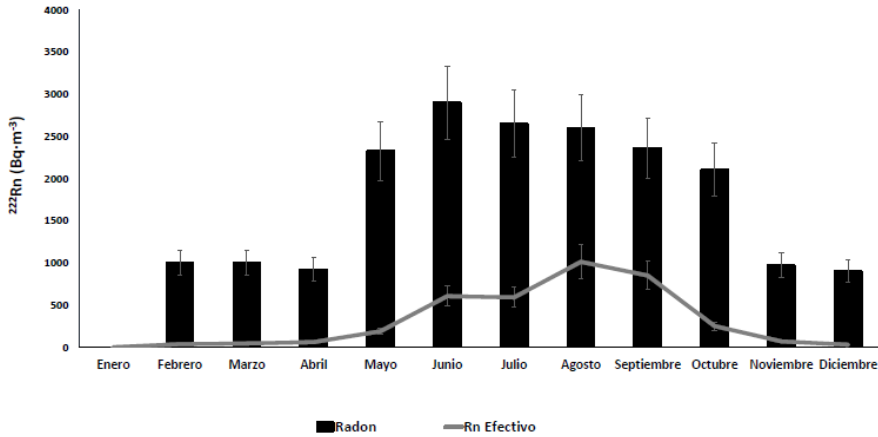


Figura 6.7: Concentración de radón efectivo inhalado por las trabajadoras y concentración real de radón en la cueva del Rull..

para trabajadores que ocupan toda su jornada laboral en el interior de una instalación. Para los turistas se han utilizado los 40 min que dura una visita aproximadamente. Todas las dosis obtenidas se muestran en las tablas 6.3 y 6.4, para trabajadoras y turistas respectivamente.

Las dosis estimadas suponiendo un factor de equilibrio $F = 0,4$ y los factores de conversión a dosis $DCF = 24 \text{ mSv/WLM}$ y $DCF = 5 \text{ mSv/WLM}$ son 51 mSv y 11 mSv , respectivamente. Cuando se consideran los factores de equilibrio medidos en lugar del factor recomendado, la dosis estimada disminuye a $39,4 \text{ mSv}$ y $8,2 \text{ mSv}$ para cada uno de los dos DCF , un 30% menor que si se utiliza un factor de equilibrio $F = 0,4$. Si además se tienen en cuenta los tiempos de permanencia reales en el interior de la cueva, estas dosis disminuyen a $9,7 - 2,0 \text{ mSv}$ para ambos DCF , respectivamente. Estas dosis son un 80% inferiores a las calculadas si se utiliza un factor de equilibrio asumido $F = 0,4$ y una permanencia de 2000 h. Al considerar el DCF de la última recomendación del ICRP, $DCF = 24 \text{ mSv/WLM}$, la dosis anual supera los 6 mSv recomendados en la IS-33 [CSN12a].

En la gráfica 6.8, se ha representado la dosis mensual de una trabajadora con un $DCF = 5 \text{ mSv/WLM}$ para las determinaciones con tiempos y F recomendados y los realmente medidos. Se puede observar que las dosis recibidas

para las condiciones medidas y el tiempo registrado real son inferiores a las estimadas si utilizamos un factor de equilibrio tabulado y toda la jornada laboral, exceptuando los meses de agosto y septiembre. En estos meses, el factor de equilibrio medido es superior a 0,4 y el tiempo de permanencia en la cueva es mayor que en otros meses, puesto que hay mayor afluencia de turistas, de hecho la dosis recibida por una trabajadora solo en estos meses representa el 50% de la dosis total anual, con 0,55 mSv y 0,46 mSv, en agosto y septiembre respectivamente, siendo 2,0 mSv el total de dosis anual obtenido con los parámetros medidos y $DCF = 5 \text{ mSv/WLM}$.

Las dosis que podrían llegar a ser recibidas por un turista en una visita de 40 min en el interior de la cueva, si tenemos en cuenta los factores de equilibrio medidos son máximas en diciembre, $3,8 \mu\text{Sv}$, mientras que si utilizamos el factor de equilibrio $F = 0,4$ serían máximas en julio, con $25,6 \mu\text{Sv}$ con $DCF = 5 \text{ mSv/WLM}$. El comportamiento con $DCF = 24 \text{ mSv/WLM}$ será similar, tanto para trabajadores como para turistas, pero casi 5 veces mayor.

Todas estas variaciones ponen de manifiesto la importancia de utilizar un factor de equilibrio medido y la permanencia real mensual, para estimar las dosis con la mayor precisión posible.

Tabla 6.3: Dosis estimadas para las trabajadoras de la cueva teniendo en cuenta diferentes DCF, F y tiempo de permanencia.

$DCF \text{ (mSvWLM}^{-1}\text{)}$	Dosis (mSv)		
	$F = 0,4$ $\Delta t = 170 \text{ h}$	F_{medido} $\Delta t = 170 \text{ h}$	F_{medido} $\Delta t = \text{tiempo real}$
24	51	39,4	9,7
5	11	8,2	2,0

Tabla 6.4: Dosis estimadas para un turista de la cueva teniendo en cuenta diferentes DCF, F.

DCF ($mSvWLM^{-1}$)	Dosis (μSv)		
		$F = 0,4$ $\Delta t = 40 \text{ min}$	F_{medido} $\Delta t = 40 \text{ min}$
24	Mínimo	3,1 (Febrero)	3,5 (Marzo)
	Máximo	122,7 (Julio)	18,0 (Diciembre)
5	Mínimo	0,6 (Febrero)	0,7 (Marzo)
	Máximo	25,6 (Julio)	3,8 (Diciembre)

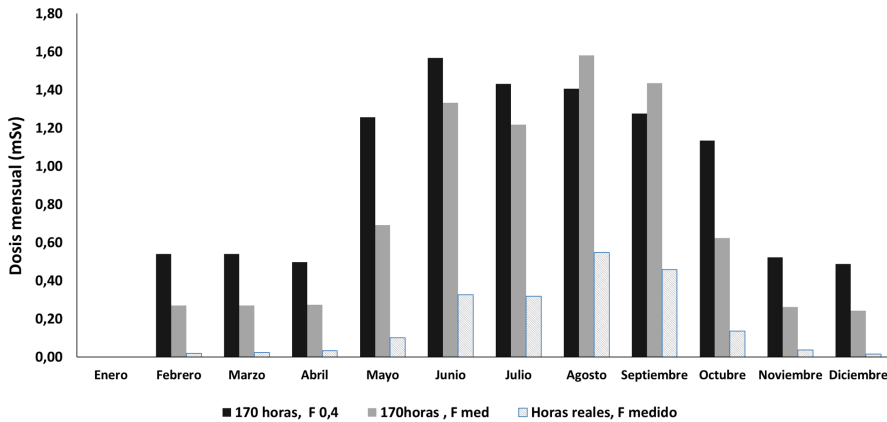


Figura 6.8: Dosis recibidas por una trabajadora mes a mes ($DCF = 5 mSv/WLM$).

6.7. Conclusiones

La actividad media anual de radón en esta cueva es superior a la legislada para lugares de trabajo de 300 Bq/m^3 , con una media de $1,8 \pm 0,8 \text{ kBq/m}^3$. La concentración en verano es tres veces superior a la encontrada en los meses de invierno, siendo en estas estaciones de 3 kBq/m^3 y $0,9 \text{ kBq/m}^3$, respectivamente.

El comportamiento de radón en la cueva puede ser explicado por la morfología de esta y los movimientos de masas de aire en su interior, que son provocados por las condiciones ambientales, principalmente por la diferencia de temperatura entre el interior y el exterior de la cueva. En invierno las concentraciones son inferiores porque se produce ventilación o desgasificación de la cueva. El aire del interior es más cálido que el del exterior y esto da lugar a que las masas de aire frío entren en la cavidad y se origine una mayor ventilación por las diferentes entradas. En verano, sin embargo, el aire del interior de la cueva tiene una temperatura inferior al aire exterior, por lo que el movimiento de convección se detiene y el aire se queda estancado en el interior, quedándose también estancado el radón.

Los estudios de correlación con las condiciones climáticas han mostrado, que además de la influencia de la temperatura, la concentración de radón también se ve afectada por la velocidad del viento, encontrándose menor concentración del gas cuando esta es mayor. Esta relación parece indicar que la cueva además de ventilarse por la entrada, también lo hace por grietas.

El comportamiento del radón es típico de cuevas con esta estructura: con una entrada horizontal-superior, una bóveda en el techo y una red de fisuras superiores [Wan19]

Según los estudios realizados en el Departamento de Ciencias de la Tierra y del Medio Ambiente de la Universidad de Alicante [Pla16], el perfil de radón anual encontrado en esta cueva es paralelo al perfil del gas CO_2 . De hecho, el estudio de Pla y colaboradores sobre la cavidad se realizó al mismo tiempo que el presente y continuó dos años más, en los que se encontró un comportamiento estacional similar, sin embargo, las concentraciones medias, tanto de CO_2 como de ^{222}Rn , fueron algo superiores, debido a que la temperatura media exterior también subió. A pesar de que el origen del CO_2 y del radón en el interior de

las cuevas no es el mismo, el comportamiento en su atmósfera si suele serlo, ya que está regido por los mismos parámetros de intercambio de aire entre el interior y el exterior [Kow10].

El factor de equilibrio también presenta variaciones estacionales, siendo en los meses de verano un 50 % superior al de los meses de invierno con $F = 0,4$ y $F = 0,2$, respectivamente. En los meses de verano, cuando la ventilación es baja, los descendientes sólidos del radón, al igual que este, permanecen y se acumulan. Esta falta de ventilación también provoca un aumento de partículas en el interior, por lo que la probabilidad de que los descendientes se asocien a partículas es mayor [Rab18, Yu96]. La gran humedad que hay en la cueva, que ronda el 100 % tanto en invierno como en verano, haría que estos descendientes, agregados a las moléculas de vapor de agua permanecieran en suspensión [Chu96]. Además, la deposición en suelos y paredes en esta cueva es limitada, ya que por su estructura, la cantidad de paredes, suelos o superficies en los que los descendientes del radón puedan depositarse, en relación con el volumen que esta ocupa, es muy pequeña.

A pesar de que la concentración de radón media encontrada en la cueva es mucho mayor de 300 Bq/m^3 , la dosis efectiva anual se ha estimado en $213 \pm 63 \text{ Bq/m}^3$, que cumple la legislación española [CSN12a]. Sin embargo, cuando calculamos la dosis con los diferentes DFC recomendados por el ICRP, obtenemos una dosis de $2,0 \text{ mSv}$ para $DCF = 5 \text{ mSv/WLM}$ [ICR93] y de $9,7 \text{ mSv}$ para el factor de conversión recomendado según los últimos estudios ($DCF = 24 \text{ mSv/WLM}$) [ICR17], que es superior a los 6 mSv/WLM recomendados por la misma normativa.

Capítulo 7

Concentraciones de gas radón en instalaciones hidroeléctricas subterráneas

7.1. Introducción

En este capítulo se presentan las concentraciones de radón en aire encontradas en todas las centrales hidroeléctricas subterráneas de la empresa Iberdrola Generación en España, medidas durante los años 2013 y 2018.

Las concentraciones encontradas, como se verá, son muy variadas de unas centrales a otras, dependiendo principalmente de donde están situadas.

7.1.1. Situación y descripción general de las centrales

Iberdrola posee alrededor de 76 centrales hidroeléctricas a lo largo de todo el territorio español, 13 de las cuales, por las características del terreno y la eficiencia de estas, son subterráneas. Estas 13 centrales se encuentran repartidas en tres cuencas: 6 en la cuenca del Duero, 4 en la cuenca del Mediterráneo y 3

en la cuenca del Sil.

- DUERO: C.H. Ricobayo II (Zamora), C.H. Castro II (Zamora), C.H. Vilarino de los Aires (Salamanca), C.H. Aldeadávila I y II (Salamanca) y C.H. Saucelle II (Salamanca).
- MEDITERRÁNEO: C.H. La Muela I (València), C.H. La Muela II (València), C.H. Millares II (València) y C.H. Barazar (Vizcaya).
- SIL: C.H. Villarino de Conso (Orense) y C.H. Puente Bibey (Orense), CH San Esteban (Orense)

La situación de cada una de las centrales subterráneas puede verse en la figura 7.1. Las centrales de Duero y Sil se encuentran en zonas con niveles potencialmente altos de radón. El terreno de la zona es rocoso, principalmente compuesto por granito y gneis. En la cuenca del Mediterráneo, tres de las centrales están en la cuenca del Júcar (València) y la otra en Vizcaya (País Vasco). Todas ellas están en zonas con niveles potencialmente bajos de radón.



Figura 7.1: Situación de las centrales estudiadas en el mapa de España.

Las centrales hidroeléctricas son un gran parque industrial compuesto por varios elementos: edificio principal o de control, transformadores, tendido, parque y central, como puede verse esquemáticamente en la figura 7.2. En ellas se utilizó el desnivel entre dos sistemas de almacenamiento de aguas, ríos o

embalses, para hacer pasar agua por grandes turbinas y convertir la energía potencial que se genera en energía eléctrica. La central, propiamente dicha, o edificio principal, es totalmente subterráneo, como puede verse en la figura. En esta central ejemplo, el edificio subterráneo se encuentra a una profundidad de alrededor de 400 m. A algunas de ellas se accede por túneles desde la carretera y en otras desde el edificio de control que se comunica mediante ascensores.

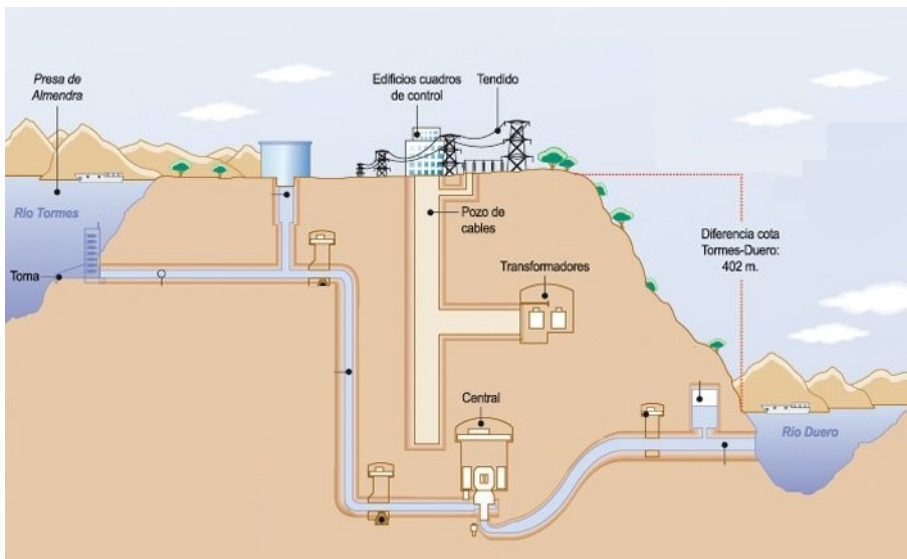


Figura 7.2: Esquema de una central hidroeléctrica.

Todas las centrales siguen un esquema similar, de forma general, de menor a mayor profundidad encontramos: una planta excitatriz o planta de alternadores, una planta intermedia, y una planta de turbinas que a su vez incluye una zona de válvulas esféricas. Bajo esta última planta se encuentra una pequeña galería llamada pozo de achique, que es una zona de elevada humedad poco transitada. Algunas de ellas, las más pequeñas, no poseen planta intermedia. A modo de ejemplo, en la figura 7.3, se muestran fotografías de cada una de las plantas de una de las centrales. Como se puede ver, hay paredes que están recubiertas de hormigón o de planchas de otros materiales y otras son simplemente la roca excavada.

Las plantas de cada una de las centrales son de gran extensión, alrededor

de los 1000 m² las más grandes, hasta los 300 – 200 m² las más pequeñas. La mayoría de ellas se encuentran comunicadas por barandillas y anchos tiros de escalera de forma que todas las plantas se encuentran comunicadas entre sí.

Al tratarse de excavaciones subterráneas de gran profundidad se encuentran ventiladas, en algunos casos por ventilación natural con aperturas en ambos extremos de la caverna principal y en otros por ventilación forzada, dependiendo de las necesidades y del tipo de construcción de cada central. La temperatura en el interior de las instalaciones es prácticamente constante, entre 20 y 23°C, y la humedad varía entre un 45 y 70 %.

Los trabajos que se realizan en estas instalaciones son principalmente de mantenimiento, ya que su funcionamiento es prácticamente automático, por lo que los trabajadores no pasan toda su jornada laboral en el interior de la instalación subterránea.



PLANTA TURBINAS



PLANTA INTERMEDIA



PLANTA ALTERNADORES

Figura 7.3: Plantas de una central hidroeléctrica.

7.2. Elección del plan de medidas

7.2.1. Homogeneidad de radón, puntos de muestreo y detectores que se utilizarán

La fase preliminar del estudio se llevó a cabo desde julio a septiembre de 2012. Para ello, puesto que el número de centrales era muy alto, se eligieron tres, una de cada cuenca, escogiendo la más representativa para planear el estudio, las zonas homogéneas de radón y el número de detectores que serían necesarios.

En la cuenca del Duero dada la proximidad geográfica de sus instalaciones y similitud de sus diseños se escogió la central C.H. Aldeadávila I, que es una de las más grandes.

En la cuenca del Sil, en las fechas del estudio inicial solo existían dos instalaciones, C.H Villarino de Conso y C.H Puente Bibey, ya que C.H San Esteban inició su actividad en el año 2013. Ambas centrales son de similares características y se encuentran muy próximas, en el mismo macizo granítico, por lo que se decidió realizar el estudio inicial en C.H. Villarino de Conso.

En la cuenca del Mediterráneo, dos de las centrales estaban situadas en la cuenca del Júcar (València), C.H Millares y C.H La Muela I, y la otra en Vizcaya, C.H Barazar. En aquel momento se estaba construyendo la C.H La Muela II. Todas ellas están en zonas con niveles potencialmente bajos de radón, por lo que no se esperaba que existieran grandes concentraciones en ninguna de ellas, se escogió la central más grande de las que en aquel momento estaban operativas, C.H La Muela I.

7.2.1.1. Estudio preliminar en la central Villarino de Conso

El estudio preliminar en la central hidroeléctrica de Villarino de Conso se llevó a cabo entre el 19/07/2012 y el 24/09/2012. En la primera visita se colocaron por toda la instalación canister de carbón activo, que estuvieron expuestas durante dos días, para estudiar la homogeneidad en la central, y detectores de trazas de tipo cerrado CR39 de la casa comercial ALGADE que permanecieron en la instalación durante todo el tiempo del estudio. En algunos lugares se dispusieron detectores electrónicos, pero no se disponía del número de detectores necesario, por lo que solo se utilizaron en algunas zonas. Los

detectores se dispusieron por todas las plantas de la siguiente forma:

- Sala de Control. La sala de control se encuentra fuera de la central excavada. Es un edificio anexo a la instalación, en esta sala se colocó un equipo electrónico RSCOUT durante la visita.
- Planta alternadores. Es la primera planta de la central es totalmente abierta, como se observa en la figura 7.3. En ella se situaron dos canister de carbón activo en los lados derecho e izquierdo, y un detector de trazas que estuviera expuesto más tiempo.
- Planta intermedia. Esta planta, aunque no se encuentra compartimentada totalmente, si que presenta barreras arquitectónicas, como se observa en la figura 7.3. Como en la planta anterior, se dispusieron dos canister de carbón activo siguiendo la misma distribución, una hacia la derecha y otra más hacia la izquierda junto con un detector de trazas. Se utilizó, además, durante un día, un detector electrónico RSCOUT que estuvo midiendo durante 4 horas con la ventilación apagada y se evaluó el efecto que esta podría tener.
- Planta de turbinas. En esta planta, de características similares a la anterior, se instalaron dos canister de carbón activo y un detector de trazas.

Las actividades de radón encontradas en este primer estudio se muestran de forma esquemática en la figura 7.4, donde se representan los resultados de los detectores pasivos en cajas grises, los correspondientes a los equipos electrónicos en cajas azules y los de canister de carbón activo en forma circular. En la figura se han distribuido los resultados de forma similar a como se dispusieron los detectores en la central, tratando así de ilustrar la posición de estos.

Los datos obtenidos con canister muestran que la concentración de radón es homogénea planta a planta, siendo mayor en las plantas de alternadores y turbinas, con máximos de $220 \pm 30 \text{ Bq/m}^3$ y $297 \pm 50 \text{ Bq/m}^3$, respectivamente e inferior en la planta intermedia, con $164 \pm 25 \text{ Bq/m}^3$.

Los resultados de los detectores pasivos, con un tiempo de integración mayor, arrojaron valores coherentes con los encontrados con las canister de carbón activo en dos días. Y parecen indicar un aumento gradual de la concentración desde la primera planta hasta la más baja, con $147 \pm 39 \text{ Bq/m}^3$ en la planta de

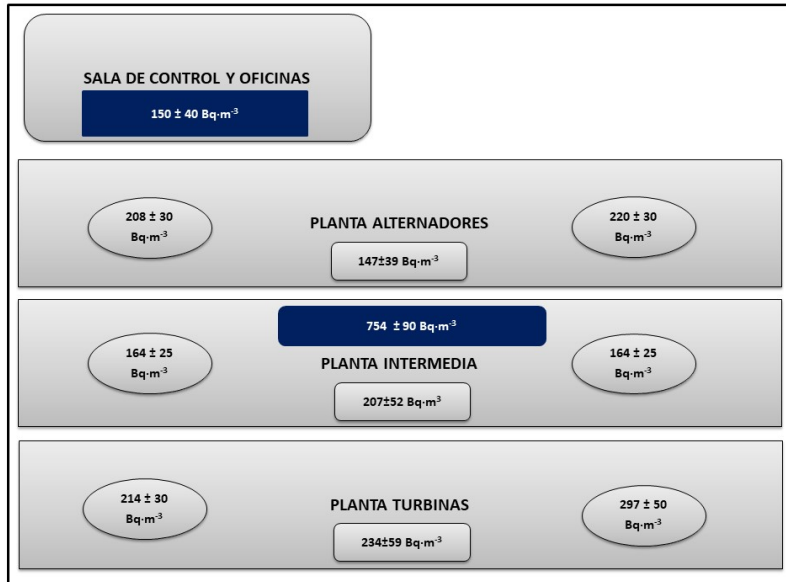


Figura 7.4: Concentraciones de radón obtenidas estudio preliminar en la central hidroeléctrica de Villarino de Conso.

alternadores, $207 \pm 52 \text{ Bq/m}^3$ en la planta intermedia, y $234 \pm 59 \text{ Bq/m}^3$ en la planta de turbinas.

Los resultados de la sala de control, a pesar de no ser esta subterránea, también muestran concentraciones elevadas de radón de $150 \pm 40 \text{ Bq/m}^3$.

En el poco tiempo en el que la concentración de radón fue medida con la ventilación de la instalación apagada, el detector electrónico registró un ascenso de hasta $754 \pm 90 \text{ Bq/m}^3$, por lo que se recomendó no apagar la ventilación en ningún momento para evitar así grandes acumulaciones de radón.

7.2.1.2. Estudio preliminar en la central hidroeléctrica Aldeadávila I

El estudio preliminar en la central hidroeléctrica de Aldeadávila I se realizó entre el 18/07/2012 y el 28/09/2012. En la primera visita a la central se colocaron por toda la instalación canister de carbón activo, que estuvieron expuestas durante dos días, para estudiar la homogeneidad en la central y detectores

de trazas de tipo cerrado CR39 de la casa comercial ALGADE que permanecieron en la instalación durante todo el tiempo del estudio. Los detectores se dispusieron de la siguiente manera:

- Planta de Sala de Control. La sala de control se encuentra fuera de la central excavada inmediatamente encima de esta y es una de las zonas con mayor índice de ocupación. En esta se colocaron dos canister de carbón activo y un detector de trazas de tipo cerrado.
- Planta de transformadores. Es la planta de entrada a la central, es totalmente abierta sin ninguna compartimentación por lo que en ella se instaló una canister de carbón activo y un detector de trazas de tipo cerrado.
- Planta intermedia. En esta planta se dispusieron dos canister activo para observar la homogeneidad y un detector de tipo cerrado.
- Planta de turbinas. Se colocaron 4 detectores, dos canister carbón activo y dos detectores de trazas de tipo cerrado.
- El pozo de achique de la central, se encuentra en un extremo debajo de la planta de turbinas, en este se situó un detector de trazas.
- Viviendas de operarios. En el complejo de Aldeadávila, como en algunos otros, antiguamente se ofrecía a los trabajadores unas casas anexas a las centrales para que estos vivieran junto a sus familias. Actualmente estas viviendas no se encuentran ocupadas, pero sí lo habían estado en el pasado por lo que se decidió realizar una medida puntual para conocer la concentración que en estas podría haber tenido lugar. Se dispusieron dos canister de carbón activo en una vivienda del poblado de la central en el salón y en uno de los dormitorios.

Las actividades de radón obtenidas en este primer estudio se representan de forma esquemática en la figura 7.5, donde, como en el caso anterior, se representan los resultados de los detectores pasivos en cajas y los de las canister de carbón activo en forma circular.

Los resultados de las canister muestran que las actividades de radón se pueden considerar homogéneas y poco significativas en la sala de control, con una actividad media de $57 \pm 12 \text{ Bq/m}^3$, así como en las casas de los operarios,

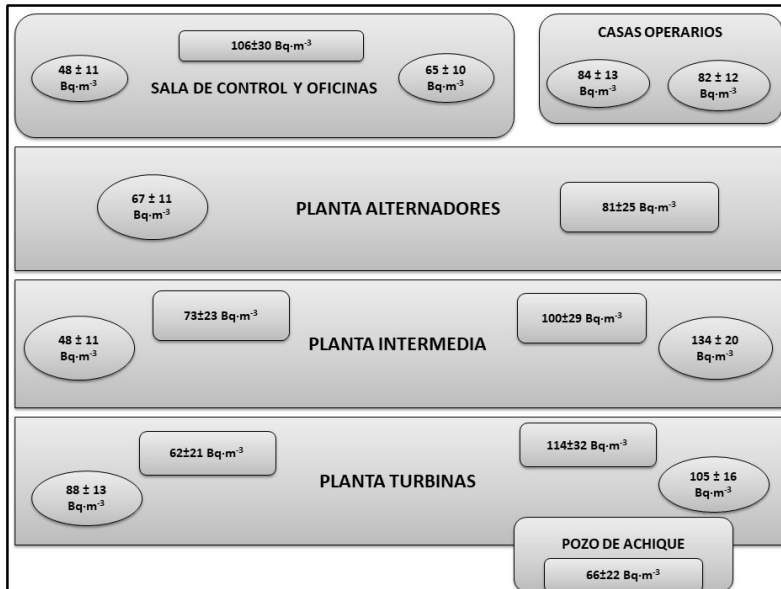


Figura 7.5: Concentraciones de radón obtenidas en el estudio preliminar en la central de Aldeadávila I.

$83 \pm 13 \text{ Bq/m}^3$. Sin embargo, se obtuvieron diferencias de homogeneidad en las plantas intermedia y turbinas, donde parece haber una mayor concentración en la parte derecha con $134 \pm 20 \text{ Bq/m}^3$ y $105 \pm 16 \text{ Bq/m}^3$, respectivamente, y menos en la parte izquierda con $48 \pm 11 \text{ Bq/m}^3$ y $88 \pm 13 \text{ Bq/m}^3$. Estas diferencias entre la parte derecha e izquierda podrían ser debidas a que bajo la parte derecha se encuentra la zona de achique de agua. A pesar de que en el pozo la concentración encontrada es inferior, se podría estar provocando un efecto chimenea desde la zona más baja a la más alta. La concentración media de radón en toda en la instalación, teniendo en cuenta los resultados de estos detectores es de unos $75 \pm 22 \text{ Bq/m}^3$.

Los datos obtenidos a partir de los detectores pasivos, que estuvieron expuestos más tiempo, muestran el mismo comportamiento de homogeneidad que las canister. Los resultados medios de concentración de radón en aire durante todo el tiempo que estos estuvieron expuestos son similares a los tomados en tan solo dos días con las canister, con una media de $86 \pm 21 \text{ Bq/m}^3$.

Esta instalación se encuentra ventilada naturalmente por aperturas en ambos extremos de esta, por lo que no se estudió el posible efecto de la ventilación.

7.2.1.3. Estudio preliminar en la central hidroeléctrica La Muela I

El estudio preliminar en la central hidroeléctrica de La Muela se llevó a cabo entre el 09/07/2012 y el 10/09/2012. El terreno de la zona es de tipo calcáreo, por lo que no se esperaban elevadas concentraciones de radón. En la primera visita a la central se colocaron por toda la instalación canister de carbón activo, que estuvieron expuestos durante dos días, para estudiar la homogeneidad en la central y detectores de trazas de tipo cerrado CR39 de la casa comercial ALGADE que permanecieron en la instalación durante todo el tiempo del estudio. Esta central está más compartimentada que el resto, por lo que se utilizaron más detectores que en las anteriores. Los detectores se dispusieron de la siguiente manera:

- Planta Principal. Esta planta es de tipo abierto, pero en ella se encuentra totalmente cerrada la antigua sala de control, que ya no está en uso, por lo que en esta se instalaron una canister y un detector de trazas en el interior de la sala. En el exterior, en la planta abierta se instaló un detector de trazas.
- Planta de intermedia. Esta planta se encuentra compartimentada en tres salas de control, cada una de un grupo de turbinas, razón por la cual en esta planta se colocaron 4 detectores de trazas, uno a la entrada y otros tres en las salas de control, y de la misma manera 4 canister de carbón activo.
- Planta de turbinas. Esta planta es más pequeña que las anteriores, en ella se dispusieron un detector de trazas y una canister de carbón activo.
- El pozo de achique de la central, se encuentra en un extremo debajo de la planta de turbinas. En él se instaló una canister de carbón activo.

Las actividades de radón encontradas en este primer estudio se encuentran recogidos de forma esquemática en la figura 7.6, donde, como en los casos anteriores, se representan los resultados de los detectores pasivos en cajas y los de los de las canister de carbón activo en forma circular.

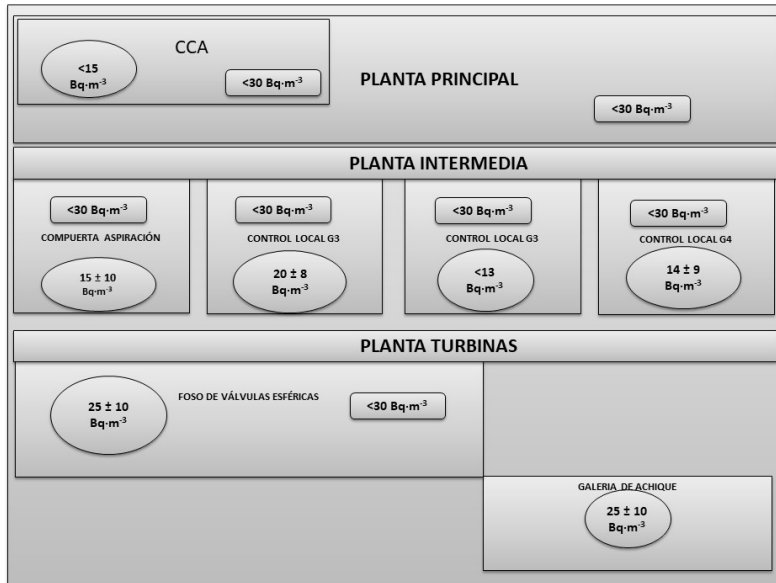


Figura 7.6: Concentraciones de radón obtenidas en el estudio preliminar en la central de La Muela I.

Todos los detectores de trazas que estuvieron expuestos durante los dos meses del estudio dieron resultados por debajo del límite de detección de estos, $< 30 \text{ Bq}/\text{m}^3$. Las canister de carbón activo tienen un límite de detección inferior, y nos dan concentraciones de radón de entre $14 \pm 9 \text{ Bq}/\text{m}^3$ y $25 \pm 10 \text{ Bq}/\text{m}^3$, en los casos en los que este se supera.

7.2.1.4. Conclusiones de los estudios preliminares

Tal y como se esperaba, por las propiedades del terreno, las centrales estudiadas de la cuenca del río Sil y del río Duero tienen concentraciones de radón mayores que la estudiada en la cuenca del Mediterráneo, donde las actividades encontradas son insignificantes desde el punto de vista de protección radiológica, siendo alrededor de $200 \text{ Bq}/\text{m}^3$ en la central de Villarino de Conso.

Los valores registrados con detectores de película en períodos de exposición largos son concordantes con los obtenidos en los análisis más puntuales, de tan solo dos días, realizados con canister de carbón activo.

De forma general se puede considerar que existe homogeneidad de radón en cada una de las plantas, con algunas pequeñas variaciones en la central de Aldeadávila I, no siendo así en altura, donde observamos un aumento de las concentraciones con la profundidad. Estas diferencias de homogeneidad son probablemente debidas a la proximidad a pozos de achique del agua infiltrada.

Existe una fuerte dependencia con el grado de ventilación, que quedó de manifiesto al apagar la ventilación en la central de Villarino de Conso y se produjo una acumulación importante de radón en unas pocas horas. Las concentraciones en Aldeadávila son menores a las de Villarino de Conso probablemente debido a que esta central está ventilada de manera natural constantemente.

7.3. Actividades de radón en todas las centrales durante tres meses

Con las conclusiones obtenidas en los estudios previos de homogeneidad, se decidió medir en todas las centrales durante tres meses. Los detectores que se utilizaron fueron detectores de trazas, que se expusieron en todas las plantas con una densidad de dos por planta. En la tabla 7.1 se muestran las concentraciones medias encontradas en todas las centrales en cada una de las plantas, y la concentración media en la instalación. Los niveles de radón se encontraban por debajo de los 300 Bq/m^3 en todos los casos. Como en el estudio inicial, las centrales de la cuenca del Mediterráneo ofrecieron en su mayoría concentraciones por debajo de los límites de detección.

En todas las instalaciones de la cuenca del Duero los niveles medios de radón están por debajo de los 100 Bq/m^3 .

Con respecto a la cuenca del Sil, en la central de Puente Bibey se detectó un actividad media de 100 Bq/m^3 , como se observa en la tabla 7.1, y en la central de Villarino de Conso se encontraron las mayores concentraciones de todas las centrales, con una media de $211 \pm 56 \text{ Bq/m}^3$. Por esta razón, se decidió medir en esta instalación durante un año completo.

En general, se puede considerar que la concentración en todas las plantas es comparable con la media, aunque se observa un leve aumento con la profundidad, a excepción de Saucelle donde disminuye, no es un aumento que puedan considerarse significativo.

Tabla 7.1: Concentración de gas radón en todas las centrales hidroeléctricas en 3 meses del año 2013.

Central	Período de medida	Alternadores		Intermedia		Turbinas		Media de la instalación	
		^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³
1	Vilarino de los Aires	29 - 11 - 2012//28 - 02 - 2013	53 ± 10	65 ± 10	30 ± 6	49 ± 18			
2	Saucelle II	29 - 11 - 2012//04 - 03 - 2013	100 ± 20	92 ± 14	88 ± 12	93 ± 20			
3	Aldeavila I	18 - 07 - 2012//20 - 09 - 2012	57 ± 11	67 ± 11	91 ± 16	72 ± 17			
4	Aldeavila II	29 - 11 - 2012//28 - 02 - 2013	67 ± 10	82 ± 12	82 ± 12	77 ± 12			
5	Castro II	29 - 11 - 2012//01 - 03 - 2013	64 ± 10	85 ± 15		78 ± 33			
6	Ricobayo II	29 - 11 - 2012//28 - 02 - 2013	54 ± 10	88 ± 12	120 ± 20	87 ± 33			
7	Puente Bbvey	28 - 11 - 2012//28 - 02 - 2013	100 ± 20	99 ± 20		100 ± 20			
8	Villarino de Conso	19 - 07 - 2012//24 - 09 - 2012	214 ± 30	164 ± 25	256 ± 40	211 ± 56			
10	Millares	04 - 12 - 2012//28 - 02 - 2013	< 27	< 27	< 27	< 27			
11	La Muela I	09 - 07 - 2012//10 - 09 - 2012	< 20	< 20	25 ± 5	< 20			
13	Barazar	05 - 12 - 2012//28 - 02 - 2013	< 26	< 26	< 26	< 26			

7.4. Actividades de radón en todas las centrales durante un año completo

Como se ha comentado en la sección anterior, las concentraciones de radón encontradas en la central de Villarino de Conso son las más elevadas, rondando los 300 Bq/m^3 , límite a partir del cual puede considerarse peligroso para los trabajadores desde el punto de vista radiológico, por lo que se realizó el estudio durante un año completo por si el radón aumentaba en otras estaciones sobrepasandose el límite. Durante el año 2014 la empresa Iberdrola inauguró una nueva central en la Cuenca del Sil, Central Hidroeléctrica de San Esteban, cercana a la de Villarino de Conso, por lo que, por cercanía y similitud del terreno, se decidió realizar el mismo estudio anual que se iba a realizar en esta.

En el resto de centrales, en la cuenca del Duero y del Mediterráneo, donde las concentraciones estudiadas durante tres meses del año 2013 no eran concentraciones que pudieran considerarse peligrosas desde el punto de vista de protección radiológica, los estudios presentados se consideraron en aquel momento suficientes y no se llevó a cabo un estudio anual. Sin embargo, la instrucción IS-33 del Consejo de Seguridad Nuclear recomienda realizar los estudios de concentración de radón en instalaciones subterráneas cada 5 años, por si hubieran existido variaciones de concentración debidas a cambios estructurales u otras causas. Por esta razón, las centrales que habían sido examinadas los años 2012-2013 se volvieron a estudiar durante los años 2018/2019, esta vez durante un año completo. Las centrales del Sil, Villarino de Conso y San Esteban, en las que se había realizado el estudio completo de un año durante los años 2014/2015 se están estudiando en el presente año.

Como ya se había estudiado la homogeneidad anteriormente, se decidió colocar dos detectores de trazas por planta en todas las centrales, que se sustituyeron cada 3 meses aproximadamente para cubrir así un año completo de medida. Se utilizaron detectores de tipo cerrado CR39, del laboratorio RADUCAN. En la tabla 7.2 se muestran los resultados medios en cada una de las instalaciones planta a planta, así como la concentración media anual. En todas las instalaciones las concentraciones anuales se encuentran por debajo de los 300 Bq/m^3 .

De forma general, en las instalaciones de la cuenca del Duero (1-6), durante los años 2014/2015 se observan concentraciones más altas para la medida de un año completo que en el año 2013. En las centrales Aldeadávila I (3) y Castro II (5), la diferencia con el año 2013 es menor. Sin embargo se aprecia un gran incremento en las centrales 1, 2, 4 y 6. En estas se observa además mayor inhomogeneidad entre las plantas y, como veremos en el próximo apartado, en las diferentes estaciones del año, lo que explica que la concentración media en un año sea superior a la medida en tres meses en el anterior estudio.

En la cuenca del Sil, en la central de Puente Bibey (7) la concentración sigue siendo como se observó en el año 2013, homogénea en todas las plantas con una media de $98 \pm 27 \text{ Bq/m}^3$. La central de San Esteban (9) tiene un comportamiento similar a esta, con una media anual de $140 \pm 24 \text{ Bq/m}^3$ de gas radón. Sin embargo, en la central de Villarino de Conso (8) la concentración en la planta intermedia es casi el doble que en las otras dos plantas, lo que provoca que la concentración media anual encontrada sea mayor que en el año 2012 durante tres meses. Esta inhomogeneidad es principalmente debida, como se verá en el próximo apartado, a que durante un período de medida se paró la ventilación y se llegó a valores de hasta $1818 \pm 309 \text{ Bq/m}^3$. Como puede verse en el resto de períodos de medida, está alta concentración no volvió a repetirse. Debido al alto pico provocado durante este período, la planta intermedia resulta tener la mayor concentración media anual con $514 \pm 78 \text{ Bq/m}^3$, dejando una media total durante todo el año de $330 \pm 160 \text{ Bq/m}^3$.

Si se considera que en la central no se apaga nunca la ventilación, como se hizo posteriormente, y se elimina el pico que se produjo durante su apagado, las concentración media a lo largo de todo el año podría considerarse 100 Bq/m^3 inferior, con una media de $230 \pm 36 \text{ Bq/m}^3$. Como se puede observar, estos valores son más acordes con la concentración media que se obtuvo en el estudio previo en el año 2012 con una medida durante tres meses de $211 \pm 56 \text{ Bq/m}^3$.

En las centrales de la Cuenca del Mediterráneo (10-13) al igual que se veía en el año 2013, las concentraciones son inferiores al límite de detección, que es de 30 Bq/m^3 , a excepción de la central situada en el País Vasco, Barazar, donde la concentración media es de $64 \pm 20 \text{ Bq/m}^3$. Cabe destacar que en esta central, las concentraciones ofrecidas por todos los detectores durante los diferentes períodos rondaban los $35 - 40 \text{ Bq/m}^3$ pero, durante el período de medida entre

septiembre y enero, uno de los detectores de la planta turbinas reveló una concentración de 370 Bq/m^3 , el otro detector que se encuentra en la misma planta que este, dió como resultado para ese mismo período $29 \pm 20 \text{ Bq/m}^3$ y las medidas realizadas anterior y posteriormente mostraban homogeneidad en la planta, por lo que podríamos considerar este incremento un error o una anomalía debida a algún factor humano como parar la ventilación o alguna modificación realizada en la instalación durante este período, aunque este hecho no ha sido notificado por la central.

7.4.1. Variaciones estacionales de radón

Para estudiar la existencia de variaciones estacionales de concentración de radón los detectores se instalaron, en la medida de lo posible, haciendo coincidir su cambio con los cambios de estación. En las figuras 7.7 y 7.8 se muestran los resultados en cada planta y en cada estación para las centrales de las cuencas del Duero (1-6) y del Sil (7-9), respectivamente. En la cuenca del Mediterráneo, debido a las bajas concentraciones, casi todas ellas por debajo de los límites de detección, no se han estudiado las variaciones estacionales.

Si analizamos una por una cada una de las centrales de la cuenca del Duero (1-6) vemos que los comportamientos estacionales en estas son diferentes:

1. **Vilarino de los Aires.** Las concentraciones son siempre mayores en la planta turbinas que en la planta intermedia y alternadores. En primavera y verano se alcanzan concentraciones mayores que en los meses más fríos, llegando a ser casi el doble.

2. **Saucelle II.** Existe homogeneidad en las plantas en todas las estaciones, con un perfil de variación estacional similar y niveles mayores en todas las plantas en verano y otoño.

3. **Aldedávila I.** La concentración es homogénea en toda la instalación, el perfil de variación ofrece concentraciones mayores en todas las plantas en verano y menores en otoño.

4. **Aldedávila II.** La concentración es homogénea durante todo el año, pero aparece un pico muy alto en la planta de turbinas en otoño. Desde la instalación se comunicó que por revisión de uno de los grupos se abrió una cámara para su mantenimiento, que estuvo abierta durante 1 mes, lo que provoca un tiro de

Tabla 7.2: Concentraciones de radón en todas las hidroeléctricas durante un año.

Central	Período de medida	Alhermadores		Intermedia		Turbinas		Media de la instalación	
		^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³	^{222}Rn Bq/m ³
1	Vilarino de los Aires	08-03-18//27-03-19	67 ± 20	79 ± 25	200 ± 35	115 ± 28			
2	Saucele II	08-03-18//29-03-19	161 ± 32	180 ± 34	182 ± 33	175 ± 33			
3	Aldeadávila I	07-03-18//26-03-19	104 ± 28	102 ± 27	107 ± 29	104 ± 28			
4	Aldeadávila II	07-03-18//26-03-19	212 ± 29	115 ± 29	112 ± 39	146 ± 32			
5	Castro II	08-03-18//26-03-19	72 ± 23	100 ± 27		86 ± 25			
6	Ricobayo II	09-03-18//27-03-19	70 ± 23	301 ± 47	280 ± 45	217 ± 45			
7	Puente Bibey	16-03-18//23-03-19	102 ± 28	96 ± 26		98 ± 27			
8	Villarino de Conso	10/03/2014//16/04/2015	252 ± 37	514 ± 78	226 ± 32	330 ± 160			
9	San Esteban	07/04/2014//20/04/2015	123 ± 23	150 ± 25		140 ± 24			
10	Millares	07-03-18//27-03-19	< 10	< 15	< 31	< 31			
11	La Muela I	08-08-03-18//26-03-19	< 30	< 30	< 30	< 30			
12	La Muela II	08-08-03-18//26-03-19	< 30	< 30	< 30	< 30			
13	Barazar	09-03-18//27-03-19	37 ± 19	33 ± 19	118 ± 29	64 ± 20			

aire. Quitando esta anomalía, la concentración podría considerarse homogénea durante todo el año.

5. **Castro.** No existen variaciones estacionales muy marcadas, solo se observa un leve aumento en los meses de verano y primavera.

6. **Ricobayo.** El comportamiento en esta instalación es irregular. Las concentraciones en la planta de turbinas e intermedia son siempre mayores que en la planta de alternadores, con mayores acumulaciones en primavera y verano.

En la Cuenca del Sil, las centrales Puente Bibey (7) y San Esteban (9) muestran una concentración homogénea a lo largo del año en todas las plantas. En la central de Villarino de Conso (8) se observa el mismo comportamiento si se elimina el efecto producido por la parada de ventilación que se explicó en el apartado anterior.

Todas las centrales, de las cuencas del Sil y Duero, se encuentran en una zona que puede considerarse, por cercanía y similitud en la orografía del terreno, con el mismo tipo de clima; un clima de montaña, con bajas temperaturas en invierno y veranos suaves, y una gran precipitación.

Como conclusión, no se observa en este tipo de instalaciones un comportamiento estacional regular. En algunas centrales las concentraciones son mayores en los meses más cálidos y en otras en los más fríos. Los mayores incrementos son debidos a paradas en la ventilación o modificaciones temporales inevitables que no se realizan periódicamente y que tienen que ver con el funcionamiento de la instalación, en definitiva, al factor humano.

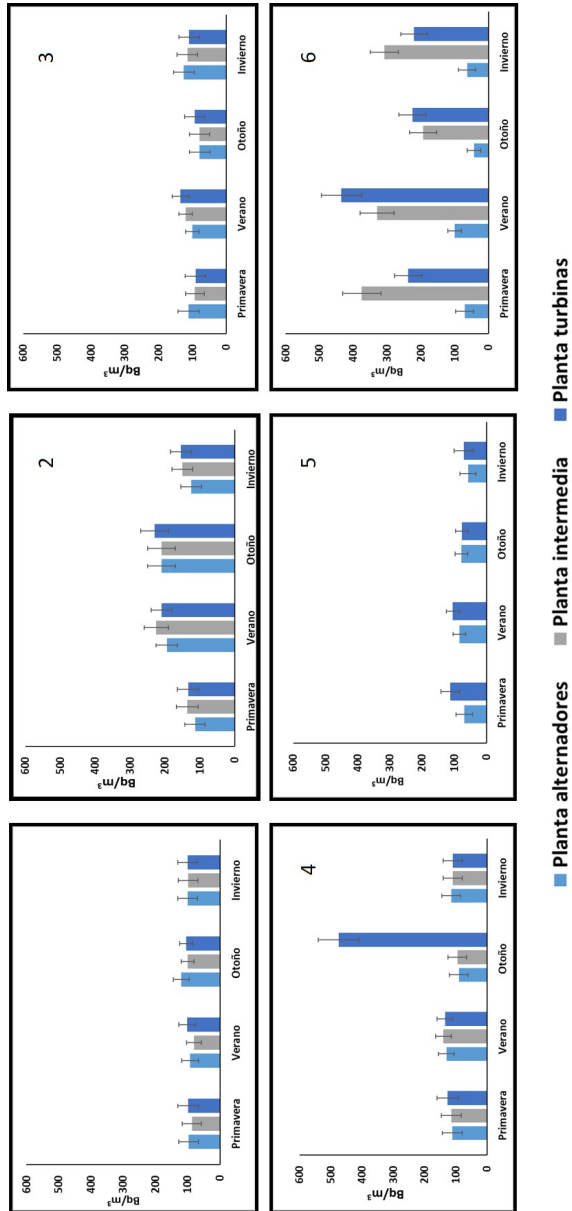


Figura 7.7: Variaciones estacionales en las centrales del Duero.

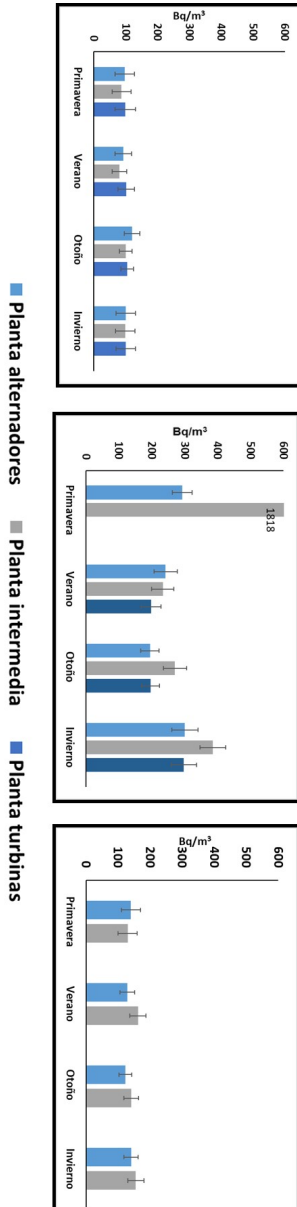


Figura 7.8: Variaciones Estacionales en las centrales del Sil.

7.5. Implicaciones dosimétricas para el personal

7.5.1. Radón efectivo

El radón efectivo ha sido calculado, como se explicó en el apartado § 4.1.2, con las concentraciones medidas en cada planta y la presencia de los trabajadores en cada una de ellas en los diferentes períodos.

Debido a la dificultad de medir el factor de equilibrio en tantas instalaciones, por insuficiencia de equipos y necesidad de la presencia personal, en este caso se ha utilizado el factor de equilibrio recomendado en la bibliografía, $F = 0,4$ [ICR17, ICR91, CSN12c, UNS00], por lo que no se ha realizado la corrección de este, sino solo la corrección por el tiempo real de trabajo, dividiendo la permanencia real en cada período entre las horas que corresponderían a una jornada laboral de 8 horas (170 h/mes). De esta manera la expresión queda simplemente en:

$$Rn_{Ef} = \sum [Rn]_{i,p} Ct_{i,p}$$

Siendo $[Rn]_{i,p}$ la concentración en cada planta, i , en el período, p , y $Ct_{i,p}$ el factor de corrección de la permanencia.

En la tabla se representan las concentraciones efectivas para los trabajadores con mayor y menor exposición. El resto de trabajadores se encuentran entre ambas.

Como se puede ver, los menores valores de radón efectivo se encuentran por debajo de los 300 Bq/m^3 , lo que era de esperar ya que las concentraciones reales ya lo eran. La baja permanencia de los trabajadores en algunas instalaciones hace que, por ejemplo, en la central de Vilarino de Conso (8), donde la concentración media superaba estos 300 Bq/m^3 , la concentración efectiva mayor recibida descienda a los 230 Bq/m^3 o que en la Central de Ricobayo (6), donde la concentración media era cercana al límite, la efectiva recibida por el trabajador más expuesto sea de 110 Bq/m^3 . Sin embargo, en las centrales 1, 3, 4 y 5, se observa que, para los trabajadores que más concentración efectiva de radón han recibido, esta es superior a la concentración media de actividad que

Tabla 7.3: Concentraciones efectivas recibidas por los trabajadores en un año.

	Central	Radón efectivo	Concentración media
		Bq/m ³	Bq/m ³
1	Vilarino de los Aires	50 – 185	115 ± 28
2	Saucelle II	59 – 190	175 ± 33
3	Aldeadávila I	30 – 135	104 ± 28
4	Aldeadávila II	143 – 292	146 ± 32
5	Castro II	34 – 110	86 ± 25
6	Ricobayo II	31 – 110	217 ± 45
7	Puente Bibey	60 – 100	98 ± 27
8	Villarino de Conso	60 – 230	330 ± 160
9	San Esteban*	140	140 ± 24

*En esta instalación no se registró el tiempo de permanencia

se había estimado. Este hecho es consecuencia de que estos trabajadores han pasado más horas que el resto trabajando en la planta con mayor acumulación de radón y en las temporadas en las que esta además era mayor.

En la central de San Esteban no se registraron las horas de trabajo planta a planta y por períodos de exposición, por lo que las concentraciones efectivas no han sido calculadas. Dado que en esta central la concentración es prácticamente homogénea durante todo el año, la concentración efectiva es igual a la real, $140 \pm 24 \text{ Bq/m}^3$, si los trabajadores estuvieran en el interior durante toda la jornada laboral, independientemente de la zona donde se encontraran.

7.5.2. Estimación de las dosis

Se han estimado las dosis a los que los trabajadores están expuestos de tres maneras diferentes.

- a) Se ha realizado el calculo a partir de la concentración media anual y 2000 horas de permanencia.
- b) Se ha considerado la concentración media, pero esta vez con el tiempo de permanencia real , sin tener en cuenta la planta ni el período.

- c) Se han utilizado las concentraciones encontradas en cada planta y la presencia de los trabajadores en cada una de ellas en los diferentes períodos.

El factor de equilibrio utilizado, así como el factor de conversión a dosis, han sido en todos los casos los recomendados en la publicación 137 del ICRP [ICR17], para lugares de trabajos subterráneos diferentes de minas o cuevas turísticas, $F = 0,4$ y $DFC = 20$ mSv/WLM. Para estos valores, el valor límite legislado actualmente es de 300 Bq/m^3 y con 2000 horas de permanencia, la dosis estimada equivaldría a $7,5$ mSv/año.

Los resultados se presentan resumidos en la tabla 7.4. En los casos b) y c), donde se tiene en cuenta la permanencia de los trabajadores, se muestran solo los resultados para el trabajador que más y menos tiempo ha estado en el interior de la instalación en todo el año, siempre eligiendo a trabajadores que hayan trabajado durante todo el año, ya que algunos de ellos solo lo hicieron durante períodos.

Se puede ver que al considerar el tiempo de permanencia real, caso b), que es muy inferior a las 2000 h, las dosis se reducen enormemente en todos los casos, quedando la mayoría de ellas por debajo de 1 mSv/año. Si tenemos en cuenta, además, la permanencia real en cada planta, y en cada período, caso c), las dosis máximas recibidas por los trabajadores son, en muchos de los casos (1,2,4,5), superiores a las estimadas a partir de la media de toda la instalación y la permanencia total anual. Lo que es debido a que la presencia de estos trabajadores ha sido mayor en las plantas y/o en períodos con mayor concentración del gas, como se observaba con el radón efectivo en el apartado anterior. El efecto contrario se observa en la centrales de Ricobayo (6) y Villarino de Conso (8), donde la concentración media era elevada debida a altos picos en una de las plantas en un período determinado, al considerar los tiempos reales se reduce debido a la baja presencia de los trabajadores en esas plantas y/o durante esos períodos.

En las centrales Aldeavila I (3) y Puente Bibey (7) la diferencia entre los casos b) y c) es mínima porque en estas centrales la concentración del gas es homogénea en el tiempo y en el espacio.

Tabla 7.4: Dosis máximas y mínimas recibidas por los trabajadores de las instalaciones hidroeléctricas.

Central	Dosis (mSv/año)		
	Caso a	Caso b	Caso c
	$\Delta t = 2000 \text{ horas}$	$\Delta t = \text{real, total}$	$\Delta t = \text{periodo, planta}$
1 Vilarino de los Aires	$2,89 \pm 0,70$	$0,51 - 0,98$	$0,56 \pm 0,01 - 1,39 \pm 0,01$
2 Saucelle II	$4,40 \pm 0,3$	$0,39 - 1,13$	$0,36 \pm 0,02 - 1,21 \pm 0,11$
3 Aldeadávila I	$2,61 \pm 0,70$	$0,20 - 0,65$	$0,19 \pm 0,03 - 0,63 \pm 0,09$
4 Aldeadávila II	$3,67 \pm 1,43$	$0,64 - 1,40$	$0,96 \pm 0,15 - 1,93 \pm 0,30$
5 Castro II	$2,17 \pm 0,66$	$0,22 - 0,70$	$0,23 \pm 0,03 - 0,78 \pm 0,11$
6 Ricobayo II	$5,45 \pm 0,98$	$0,30 - 0,85$	$0,20 \pm 0,04 - 0,64 \pm 0,14$
7 Puente Bibey	$2,46 \pm 0,68$	$0,36 - 0,62$	$0,39 \pm 0,02 - 0,65 \pm 0,05$
8 Vilarino de Conso	$8,29 \pm 4,06$	$2,77 \pm 0,42 - 4,44 \pm 0,67$	$1,63 \pm 0,23 - 4,17 \pm 0,63$
9 San Esteban*	$3,52 \pm 1,26$		

*En está central no se registró el tiempo de permanencia

7.6. Conclusiones

En este capítulo se han estudiado las concentraciones de radón de las instalaciones hidroeléctricas subterráneas en puntos diferentes del territorio español. Los niveles de concentración hallados se corresponden con el terreno donde cada una de las instalaciones se encuentran. En la cuenca del Duero y del Sil, donde el terreno es más granítico, se encuentran concentraciones de entre $100 - 350 \text{ Bq/m}^3$ aproximadamente. Las centrales del Mediterráneo, que se encuentran en zonas de bajo potencial de gas radón, se han encontrado valores muy bajos, cercanos o inferiores a los límites de detección de las diferentes técnicas de medida utilizadas, de entre 20 y 50 Bq/m^3 .

Estas concentraciones no se pueden considerar muy elevadas si tenemos en cuenta que son lugares subterráneos excavados hasta varios cientos de metros de profundidad, lo que es debido a que han sido construidos artificialmente y muchas de sus paredes se encuentran recubiertas, además de tener ventilación.

El hecho de que sean instalaciones “muy subterráneas”, creadas y ventiladas artificialmente, son las que explican que las variaciones de radón que se puedan encontrar no sean debidas a causas naturales, es decir, a variaciones en la temperatura exterior, la presión, las lluvias, etc, sino más bien a factores humanos, paradas en la ventilación artificial, pequeñas obras o desvíos a las condiciones normales de trabajo.

Las dosis estimadas sin tener en cuenta los datos reales de permanencia en el interior de las instalaciones son inferiores a 6 mSv/año máximo recomendado en la IS-33, salvo en una de ellas, Villarino de Conso(8). Considerando la permanencia, real las dosis bajan enormemente, quedándose casi todas en ellas cerca de 1 mSv/año ($0, 20 - 1, 40$). En la Central de Villarino de Conso esta dosis baja a $4,44 \text{ mSv/año}$ para el trabajador con mayor permanencia. Si además, se valora la permanencia en cada una de las plantas en los diferentes períodos, considerando así las condiciones más reales posibles para estimar las dosis, se observa que para algunos de ellos la dosis es superior a la obtenida a partir de la media, ya que han estado más tiempo en los lugares con mayor concentración de radón en un período concreto, aunque también se observa el efecto contrario en algunos casos. Todos estos resultados ponen de manifiesto la necesidad de medir en zonas diferentes y controlar la presencia en esos momentos, ya que

lo normal es que los trabajadores, que se dedican principalmente al mantenimiento de la instalación, permanezcan en su interior cuando se produce algún trabajo «no programado» que realizar en ella. En estas ocasiones en las que se ha observado que pueden producirse incrementos puntuales importantes.

Para estimar las dosis se han utilizado los datos tabulados para lugares subterráneos diferentes de minas y cuevas, con un $F = 0,4$ y un $DFC = 20 \text{ mSv/WLM}$. Sabemos que el factor de equilibrio puede ser enormemente variable debido a la mayor o menor ventilación, acumulación de partículas, la humedad o la superficie de deposición que exista. Para los datos tabulados se han tenido en cuenta todas esas características pero en el caso de “lugares subterráneos diferentes de minas o cuevas” consideramos que las características pueden ser muy variables, ya que no es lo mismo el archivo subterráneo de un museo o una biblioteca que un lugar con las condiciones de una central hidroeléctrica. En el caso de las centrales hidroeléctricas el ambiente, debido a la explotación del agua que en estas se produce, puede ser de elevada humedad 70 – 90 %, lo que podría producir que el factor de equilibrio fuera mayor, por encontrarse los descendientes del radón asociados a gotas de agua en suspensión, o menor si algún factor favoreciera la deposición de estos. Por otro lado, dado que son ambientes bastante limpios donde no se producen apenas partículas diferentes de las de agua, puede que la mayoría de los descendientes del radón se encontraran sin adherirse a partículas, por los que el DCF podría estar subestimándose. Además, la superficie de deposición es diferente en las distintas plantas, ya que la planta de alternadores suele ser una planta diáfana, amplia y alta, mientras que el resto de plantas son de menor altura y con elementos constructivos, tuberías y cableados eléctricos, por lo que la deposición en estas puede ser distinta y podrían factores de equilibrio variables.

Capítulo 8

Concentraciones de gas radón en aguas naturales de la Comunidad Valenciana

8.1. Introducción

A lo largo de los capítulos anteriores se han dado a conocer algunos resultados de concentración de ^{222}Rn en las aguas de los lugares donde se ha estudiado en aire, ya que el motivo de las altas concentraciones podría haber sido la infiltración y conducción de agua. En este capítulo se presentan las concentraciones encontradas en aguas de fuentes naturales de la Comunidad Valenciana, en las provincias de València y Castellón. Las fuentes naturales pueden presentar concentraciones de radón elevadas, ya que su origen es principalmente subterráneo. Como ya se explicó en la introducción, estas aguas pueden transportar el radón de las rocas hacia el exterior y enriquecerse en este en varios órdenes de magnitud por encima de los contenidos de radio de la roca.

Las formaciones montañosas de la Comunidad Valenciana pertenecen principalmente al período Mesozoico. En las provincias de Castellón y Valencia

predominan principalmente los materiales del Jurásico y en menor medida del Cretácico: calizas, margas y arcillas. Aunque en algunos lugares, como en la Sierra de Espadán, afloran materiales Paleozoicos: areniscas, margas, calizas o yesos, a través de pliegues y fallas.

Las zonas costeras, playas y zonas fluviales tienen una formación más reciente, y pertenecen al período Cuaternario, con terrenos formados por sedimentación y materiales limosos. Estos tipos de materiales, como se vio en el capítulo introducción, tienen bajos contenidos de uranio y radio, por lo que la probabilidad de encontrar un alto contenido de los radionúclidos en las aguas que los atraviesan no es elevada.

8.2. Puntos de muestreo y metodología

La búsqueda de fuentes naturales de agua conlleva un tiempo considerable, ya que no se encuentran en zonas urbanizadas y a muchas de ellas no se puede acceder en coche, sino que hay que andar varios kilómetros por caminos y senderos de montaña. Esto, añadido a que estas fuentes no se encuentran en los puntos distribuidos con las distancias deseadas y que en algunas ocasiones se encuentran, en diferentes épocas del año, sin agua, ha hecho que el muestreo no haya podido ser organizado con la densidad espacial adecuada.

Para escoger las zonas de muestreo nos hemos basado en mapas geológicos, en el mapa de radiación gamma MARNIA y en el mapa de potencial de radón, escogiendo los lugares donde mayor probabilidad existía de encontrar una alta concentración, por encontrarse en las zonas marcadas con mayor potencial o en zonas donde las aguas puedan proceder o pasar por estos terrenos.

Las zonas escogidas son las siguientes y pueden verse, con sus números, en la figura 8.1.

ZONA 1: Bajo Maestrazgo

ZONA 2: Sierra de Espadán

ZONA 3: Alto Mijares-Alto Palancia

ZONA 4: Sierra de la Calderona

ZONA 5: Parque Geológico Chera-Sot de Chera-Chulilla.

ZONA 6: Hoya de Buñol

ZONA 7: Canal de Navarrés

ZONA 8: Horta Oest

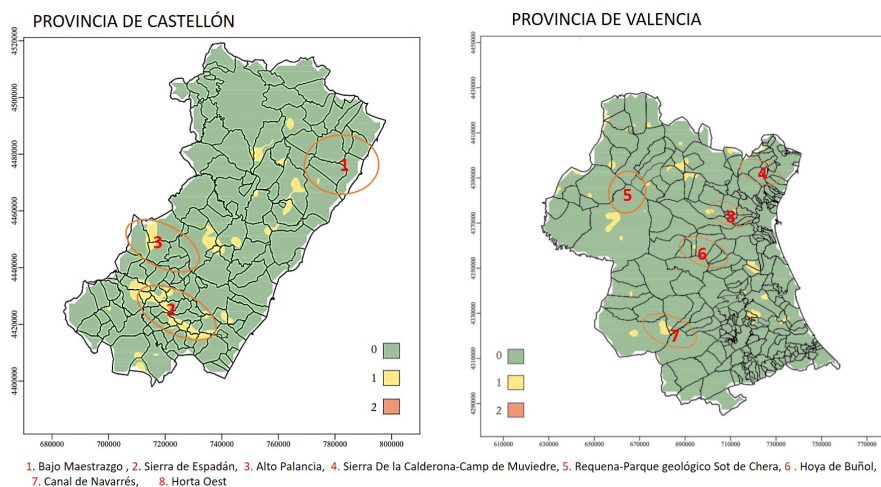


Figura 8.1: Zonas de muestreo de agua en fuentes naturales. Mapa original obtenido de Mapa predictivo de potencial de radón en España. Informes Técnicos CSN. 38-2013.

Estas muestras han sido recogidas en diferentes épocas entre los años 2017-2020, a pesar de que se podrían encontrar variaciones en el contenido de radón en ellas.

En cada una de las zonas seleccionadas se han tomado muestras de entre 4 y 8 fuentes diferentes, alejadas unas de las otras para que su origen no fuera el mismo. Las fuentes seleccionadas son en muchos de los casos fuentes antiguas típicas del pueblo o a pocos kilómetros, a las que, aún hoy en día, acude gente a por agua, antiguos lavaderos, zonas de recreo y senderos en parques naturales. En algunos casos, se indicará cuáles en los resultados, las aguas tomadas no pertenecen a fuentes, sino que se han recogido en aguas en abierto, debido al interés de estas en particular.

Las muestras fueron recogidas en envases de cristal opaco de 50 mL tal y como se explicó en el apartado § 3.1.3.1, sobre la toma de muestras para la medida de radón en agua y posteriormente fueron medidas por la técnica de centelleo líquido que se explica en el capítulo 3 §3.1.

8.3. Resultados de actividad de radón en las aguas

Las concentraciones de radón halladas en las fuentes analizadas se encuentran en todos los casos por debajo de los 100 Bq/L, con un máximo de $49,4 \pm 2,5$ Bq/L y mínimos de alrededor del AMD de la técnica utilizada, 1 Bq/L. El 45 % de las aguas analizadas han dado valores por debajo de los límites de detección ($0,8 - 1,0$ Bq/L), y la distribución encontrada es lognormal como se observa en el histograma de frecuencias de la figura 8.2. La media y desviación estándar geométricas de las concentraciones halladas es de $6,4 \pm 3,0$ Bq/L, teniendo en cuenta todas aquellas que han ofrecido valores por encima de los límites de detección.

Todos los resultados se encuentran en la tabla 8.1. Las aguas marcadas en la tabla con un asterisco pertenecen a lagunas y zonas de baño cuya procedencia es subterránea, en alguno de los casos termal. A pesar de que estas aguas no son usadas para el consumo, si que pueden aportar una alta dosis por inhalación en lugares donde se trabaje con ellas o exista infiltración. Se observa que una de ellas, que corresponde al marjal de Peñiscola, tiene una elevada concentración de 228 ± 9 Bq/L que podría llegar a aportar una dosis elevada. Estas aguas han sido eliminadas del cálculo de la media.

En el mapa representado en la figura 8.3, con la ayuda del software GIS, se representan los niveles de radón encontrados en cada uno de los puntos de muestreo. Si se compara este mapa con la figura 8.1 se observa que las mayores concentraciones no se corresponden necesariamente con los lugares donde por el mapa de predicción de radón se esperarían.

Tabla 8.1: Concentraciones de radón en aguas de la Comunidad Valenciana.

Zona	Fuente	Concentración	Zona	Fuente	Concentración
Bq/L			Bq/L		
Zona 1	1.1	$6,8 \pm 2,4$	Zona 5	5.1	$8,9 \pm 1,6$
	1.2	$< 1,00$		5.2	$10,1 \pm 1,8$
	1.3	$< 1,00$		5.3	$15,6 \pm 2,4$
	1.4*	228 ± 9		5.4	$< 1,00$
Zona 2	2.1	$< 1,00$	Zona 6	5.5	$< 1,00$
	2.2	$35,4 \pm 2,1$		5.6	$1,91 \pm 0,93$
	2.3	$1,14 \pm 0,92$		5.7	$6,6 \pm 1,4$
	2.4	$49,4 \pm 2,5$		6.1	$< 1,00$
	2.5*	$4,6 \pm 1,6$		6.2	$< 1,00$
	2.6	$< 1,00$		6.3	$1,28 \pm 0,48$
Zona 3	3.1	$4,04 \pm 1,94$	Zona 7	6.4	$3,06 \pm 0,53$
	3.2*	$3,6 \pm 1,8$		6.5	$< 1,00$
	3.3	$1,6 \pm 0,8$		6.6	$1,9 \pm 0,9$
	3.4	$23,1 \pm 1,7$		6.7	$< 1,00$
	3.5	$< 1,00$		6.8	$5,40 \pm 0,87$
Zona 4	4.1	$< 1,00$	Zona 8	7.1	$16,3 \pm 1,6$
	4.2	$< 1,00$		7.2	$< 1,00$
	4.3	$< 1,00$		7.3*	$< 1,00$
	4.4	$< 1,00$		7.4	$< 1,00$
	4.5	$5,62 \pm 0,49$		8.1	$10,2 \pm 1,5$
	4.6	$< 1,00$		8.2	$26,8 \pm 1,9$
	4.7	$< 1,00$		8.3	$14,0 \pm 1,6$
		8.4	$7,7 \pm 1,5$		
		8.5	$< 1,00$		
		8.6	$< 1,00$		

* Aguas no subterráneas, marjales y zonas de baño.

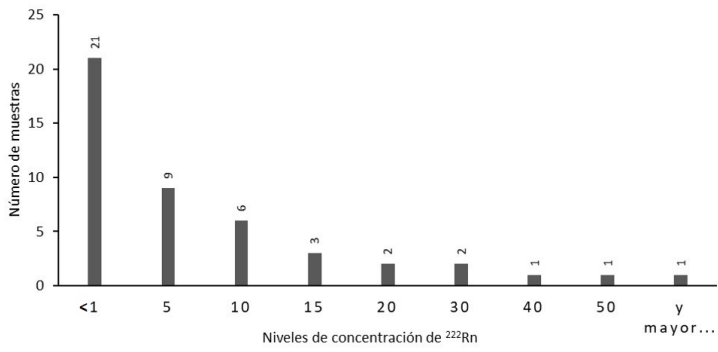


Figura 8.2: Histograma de frecuencias de concentración de radón en las aguas analizadas

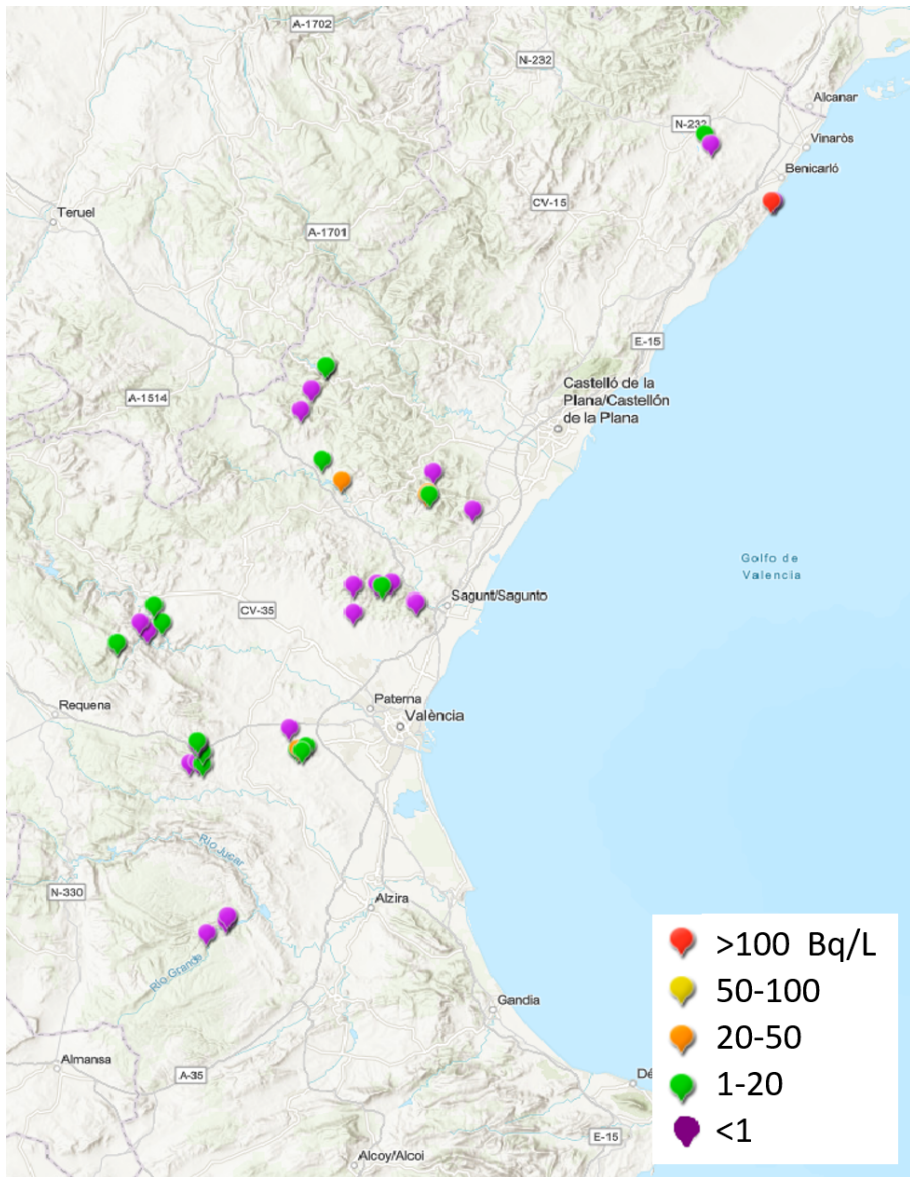


Figura 8.3: Mapa de niveles de concentración de radón en aguas naturales de Castellón y Valencia

8.4. Implicaciones dosimétricas del radón en las aguas

Las dosis han sido calculadas para la ingestión y para la inhalación que estas aguas podrían producir, tal y como se explico en la sección§ 4.2 del capítulo cuatro sobre estimación de las dosis efectivas. Para la estimación de la dosis por ingestión se ha tenido en cuenta un volumen de agua consumida de 60 L/año y un factor de conversión a dosis de $6,9 \cdot 10^{-10}$ Sv/Bq. Para la estimación de la dosis por inhalación se ha considerado un factor de transferencia de radón del agua a la atmósfera de $T = 1 \cdot 10^{-4}$, un factor de equilibrio de $F = 0,4$, una permanencia en el hogar de 7000 h anuales y un factor de conversión a dosis $DFC = 12$ mSv/WLM. Los resultados de estas estimaciones se encuentran en la tabla 8.2.

Las dosis por ingestión que han proporcionado estas concentraciones son muy bajas, de entre 0,05 y $2 \mu\text{Sv/año}$, muy por debajo del límite recomendado en la legislación. Las dosis que podrían darse por la inhalación del radón que se transfiere a la atmósfera como consecuencia de su uso en hogares varía entre 6,01 hasta $260,36 \mu\text{Sv/año}$.

8.4. IMPLICACIONES DOSIMÉTRICAS DEL RADÓN EN LAS AGUAS 215

Tabla 8.2: Dosis efectivas debidas al radón en aguas.

Zona	Fuente	Dosis ingestión $\mu\text{Sv/año}$	Dosis inhalación $\mu\text{Sv/año}$	Dosis total $\mu\text{Sv/año}$
Zona 1	1.1	0,28	35,93	36,2
	1.4*	9,44	1202	1212
Zona 2	2.2	1,46	186,5	188
	2.3	0,05	6,0	6,1
	2.4	2,1	260	262
	2.5*	0,19	24	24
Zona 3	3.1	0,17	21,31	21,48
	3.2*	0,15	19,09	19,24
	3.3	0,07	8,39	8,45
	3.4	0,96	122	123
Zona 4	4.5	0,23	29,64	29,88
Zona 5	5.1	0,37	46,68	47,04
	5.2	0,41	53,38	53,38
	5.3	0,64	82,44	82,24
	5.4	0,08	10,07	10,15
	5.5	0,27	34,81	35,08
Zona 6	6.3	0,05	6,75	6,80
	6.4	0,13	16,14	16,27
	6.6	0,08	9,76	9,83
	6.8	0,22	28,48	28,71
Zona 7	7.1	0,68	86,08	86,76
Zona 8	8.1	0,42	53,54	53,96
	8.2	1,11	141,31	142,42
	8.3	0,58	73,79	74,37
	8.4	0,32	40,35	40,67

8.5. Conclusiones

Las concentraciones de radón encontradas en las aguas de la Comunidad Valenciana son por lo general, y tal como se esperaba debido a su litografía, inferiores a 100 Bq/L , pero se observa que las aguas que contienen mayores concentraciones, aún no siendo éstas muy elevadas, no siempre se corresponden con las zonas donde cabría esperarlas según los mapas de predicción, y encontramos, por ejemplo, concentraciones de entre 10 y $26,8 \pm 1,9 \text{ Bq/L}$ en la zona 8, Calicanto, que es una zona kárstica, conocida por las minas de extracción de carbonato cálcico. En la bibliografía también se observa que no siempre se encuentra una relación directa entre la litología del terreno y la concentración de radón y otros radionúclidos en el agua, debido a que además de la composición del terreno la disolución de estos materiales depende de las condiciones físico-químicas del agua.

En España encontramos datos de la comunidad de Extremadura, que es una zona bastante granítica, donde la media de radón en aguas de manantial es de $126 \pm 8 \text{ Bq/L}$ y la correspondencia con el terreno es claramente apreciable [Lóp08]. Lo mismo ocurre en diferentes zonas del sur de Cataluña, más sílicas o calizas, donde las concentraciones varían entre $1,4 - 105 \text{ Bq/L}$ dependiendo del terreno [Fon15]. Y se encuentran concentraciones de entre $0,8 - 26 \text{ Bq/L}$ en una zona volcánica de esta misma comunidad [Mor14].

Las dosis debidas a la ingestión que las aguas analizadas podrían llegar a proporcionar varían entre $0,05$ y $2,1 \mu\text{Sv}$ anuales, quitando aquellas que no proceden de fuentes, y en ninguno de los casos podrían suponer que se superara el límite 1 mSv/año , regulado para la actividad alfa en agua [RD316].

Las dosis por inhalación que se podrían llegar a alcanzar en hogares donde se utilicen estas aguas se encuentran entre 6 y $260 \mu\text{Sv}$, llegando hasta $1,2 \text{ mSv}$ si se tienen en cuenta las aguas que no proceden de fuentes. Esta dosis por inhalación podría ser mucho mayores en industrias donde se trabaja con aguas subterráneas, ya que se utilizan mayores volúmenes de agua: envasadoras, papeleras, depuradoras, etc.

Futuros trabajos deberían ir encaminados a realizar análisis de gas radón en muchas más muestras y con mayor densidad espacial, que permitan identificar irregularidades, ya que la Comunidad Valenciana presenta una geología com-

plicada con un gran número de fallas, grietas y pliegues geológicos, que podrían hacer que se encontraran altas concentraciones en lugares donde inicialmente no se espera, como ocurre en una planta de tratamiento de aguas cercana a la Marjal de Peñiscola [FC11].

Parte IV

CONCLUSIONES
PRINCIPALES

Capítulo 9

Conclusiones

Las conclusiones tomadas en cada uno de los capítulos de este trabajo se encuentran al final de estos. En este apartado recopilamos las conclusiones generales que se recogen del trabajo completo.

En la parte de métodos se analizan y comparan diferentes metodologías de medida de concentración de radón en aire y en agua.

En cuanto a los métodos utilizados para la medida de radón en aire concluimos que:

[1.] Los métodos pasivos de medida en aire, canister de carbón activo y detectores de trazas CR39 tipo cerrado, son comparables entre ellos a bajas concentraciones de radón, cercanas a sus límites de detección ($\simeq 30\text{Bq/m}^3$). Los detectores electrónicos utilizados tienen límites de detección superiores para largas medidas.

[2.] Los detectores de trazas LR115, que a bajas concentraciones de radón son comparables a los de material CR39, a altas concentraciones, del orden de los kBq/m^3 , ofrecen resultados dispares, tanto en su configuración abierta como cerrada.

[3.] Los detectores electrónicos, detectores CR39 y canister de carbón activo ofrecen resultados comparables a altas concentraciones de radón en las condiciones de laboratorio (50 – 70 % de humedad, 20 – 25 °C de Temperatura). Los dos primeros, electrónicos y CR39, siguen siendo comparables en condiciones de elevada humedad (85 – 90 %), condiciones a las que no hemos comprobado

las canister porque adsorberían demasiada agua y habría que cambiarlas cada día.

[4.] La elección de utilizar unos u otros detectores dependerá de las necesidades de la medida. Así, a la hora de realizar el estudio de concentraciones de radón de una instalación podremos utilizar, las canister de carbón activo, para hacer un screening rápido y determinar las zonas homogéneas de radón, los detectores de trazas, para realizar medidas de larga duración y los detectores electrónicos, para identificar las variaciones de concentración de radón que puedan existir, además de para las tareas anteriores, aunque es más económico utilizar detectores pasivos para esas labores.

En lo que concierne a los métodos de medida de radón en aguas:

[5.] Se ha optimizado en el laboratorio el método centelleo líquido (LSC) sin discriminación alfa/beta, utilizando un cóctel centelleador no miscible en agua, ULTIMA GOLD F, que extrae el gas radón y permite realizar la medida con una alta eficiencia y sin interferencias. Las actividades mínimas detectables (AMD) que ofrece el método en 100 minutos de medida son de alrededor de 1 Bq/L, con una precisión y exactitud entre el 85 – 90 %.

[6.] También se ha optimizado la medida directa de radón en aguas por espectrometría gamma en el laboratorio. La actividad mínima detectable alcanzada en esta técnica es 2 – 3 Bq/L, con tiempos de medida de 80000s, con la misma precisión y exactitud que se alcanzan por la técnica de LSC.

[7.] Se han estudiado algunas desviaciones al método establecido por las normas UNE [ISO15] de toma de muestras y medida de radón en agua. En cuanto al método de toma y conservación de muestras hemos concluido que para realizar el análisis por el método de centelleo líquido, siempre que las muestras se encuentren refrigeradas, aunque el envase recomendado es de cristal, el resultado no se ve afectado si este agua ha sido tomada en envases de plástico, ya que la desviación que se produce por el propio muestreo es mayor a la producida por el envase. Sin embargo, cuando la medida va a ser realizada por espectrometría gamma, si la muestra es recogida en envase de plástico, se pueden producir pérdidas durante la medida, ya que es de un día entero de duración y en el interior del equipo la muestra no se encuentra refrigerada.

[8.] En cuanto a la extracción de la muestra del envase de muestreo para introducirla en el envase de medida, en el método de LSC, se ha concluido

que la utilización de una pipeta en lugar de una jeringa no conduce a mayores pérdidas de radón en el proceso, siempre que se realice de la forma adecuada, abriendo el envase justo antes de la extracción de la muestra y realizando el traspase de forma rápida.

[9.] Se ha comparado el método LSC con el método de medida directa por espectrometría gamma, concluyendo que ambos métodos se pueden considerar equiparables entre sí en cuanto a los resultados que ofrecen. Sin embargo, el método de espectrometría gamma requiere un día completo de medida por muestra para alcanzar el mismo AMD que en LSC, lo que hace que el radón decaiga durante la medida, se escape del envase o puedan existir variaciones de fondo. Además, no permite analizar varias muestras de forma rápida, lo que lo convierte en un método más caro que el método de centelleo líquido.

Los métodos de medida de radón en aire estudiados han sido utilizados para realizar estudios anuales de concentración de radón en diferentes lugares de trabajo, dos cuevas turísticas y trece instalaciones hidroeléctricas subterráneas, los resultados y conclusiones de estos estudios son:

[10.] Las dos cuevas estudiadas ofrecen valores medios anuales de radón muy elevados a pesar de encontrarse ambas en zonas consideradas como de bajo potencial de radón. En la cueva de San Josep la concentración media fue de $4,8 \pm 1,0 \text{ kBq/m}^3$ en el año 2013 y $4,4 \pm 1,0 \text{ kBq/m}^3$ en el 2014 y en la cueva del Rull $1,8 \pm 0,8 \text{ kBq/m}^3$.

[11.] En ambas cuevas se han encontrado variaciones estacionales de concentración de radón con un perfil similar, máximos en verano y mínimos en invierno. En la cueva de Sant Josep los valores de concentración de radón que van desde los $0,9 \text{ kBq/m}^3$ a los 12 kBq/m^3 en invierno y verano, respectivamente. En la cueva del Rull la concentración en los meses de invierno es similar a la de la cueva de Sant Josep, $0,9 \text{ kBq/m}^3$, y, aunque también se produce acumulación en verano esta es menor, hasta 3 kBq/m^3 .

[12.] Las variaciones de la concentración de radón ha sido explicadas con estudios de correlación de las variables ambientales en ambas cuevas, que indican que la diferencia de temperatura entre el interior y el exterior de la cuevas es la que provoca que exista mayor o menor concentración de radón en ellas. En los meses de invierno, cuando la temperatura exterior es superior a la temperatura interior, las cuevas ventilan naturalmente por corrientes de convección,

cuando la temperatura exterior supera la temperatura interior, deja de existir ventilación y el radón emanado de la roca se acumula en las cavidades.

[13.] Las concentraciones de la cueva del Rull parecen estar también influenciadas por la velocidad del viento. En esta ocasión de forma inversa. Lo que indica que la cavidad, además de por convección, ventila por grietas o diferentes entradas. En la cueva de Sant Josep no se observa esta influencia de la velocidad del viento, lo que indica que no existe esta ventilación y explica por qué en esta cueva se produce mucha más acumulación de radón en los meses de verano.

[14.] La influencia de la precipitación es muy pequeña y contraria en ambas cuevas. Mientras en la cueva del Sant Josep no se aprecia apenas influencia, y de observarse, son pequeños incrementos puntuales. En la cueva del Rull parece disminuir la concentración.

[15.] El factor de equilibrio calculado en la Cueva de Sant Josep tiene una tendencia anual inversa a la concentración de radón, con valores máximos en meses de invierno y mínimos en los meses de verano. En los meses de invierno es similar a los factores medios anuales de la bibliografía ($F = 0,4$), sin embargo, el valor que alcanza en los meses de verano es de los más bajos que hemos podido encontrar ($F = 0,02$). A pesar de no haber estudiado de forma práctica el porqué de este hecho, todo parece indicar que la gran concentración de radón que se acumula en los meses de verano hace que el ambiente sea más ionizante, lo que provoca que los descendientes de radón cargados positivamente se neutralicen y no se asocien a partículas en suspensión, por lo que depositan a mayor velocidad que si se encontraran asociados. La gran superficie de deposición de la cueva en relación a su volumen (techos bajos, pasillos estrechos y formaciones) favorece esta deposición.

[16.] En la cueva del Rull también se encuentran variaciones anuales de factor de equilibrio, pero en esta ocasión con la misma tendencia que las variaciones de concentración de radón, con $F = 0,4$ en los meses de verano, y $F = 0,2$ en invierno. Esta variación se explica de la misma forma que la de la concentración de radón, al dejar de existir ventilación en la cueva en los meses de verano los descendientes de este se acumulan en el ambiente. La gran humedad de la cueva favorece que estos se queden en suspensión durante más tiempo agregados a las moléculas de vapor de agua. La diferencia principal entre esta cueva y la

cueva de Sant Josep es su morfología, en esta cueva la superficie de deposición en relación a su volumen es mucho menor, lo que favorece que los descendientes de radón permanezcan en el aire. Además, el efecto de ionización del ambiente que se encuentra en la cueva de Sant Josep en esta no es apreciable, ya que la acumulación de radón es mucho menor.

[17.] Las concentraciones halladas en las centrales eléctricas se corresponden con el mapa con las zonas de mayor y menor riesgo de radón. En las centrales situadas en la cuenca Mediterránea la concentración de radón es cercana a los límites de detección de los detectores utilizados de entre 20 y 50 Bq/m³, mientras que en las centrales de las cuencas del Sil y del Duero se encuentran concentraciones de entre 100 y 350 Bq/m³.

[18.] El tipo de construcción con grandes plantas abiertas y con apenas compartimentación hace que las plantas sean zonas homogéneas de radón. En algunas de las centrales la concentración de radón se puede considerar similar en toda la instalación, mientras que en otras existen diferencias entre las diferentes plantas. En la mayoría de ellas el radón aumenta con la profundidad, pero también se da el caso contrario.

[19.] En la mayoría de las centrales de la cuenca del Duero y del Sil se observan ligeros incrementos de la concentración de radón en los meses de verano.

[20.] Los mayores incrementos que se han observado han sido debidos al factor humano, paradas en la ventilación o cambios estructurales temporales.

Con los datos de radón recogidos en los diferentes lugares de estudio se han estimado concentraciones efectivas y las dosis efectivas a las que sus trabajadores están expuestos anualmente, los hallazgos encontrados han sido:

[21.] A pesar de las altas concentraciones encontradas, tanto en las cuevas como en algunas instalaciones eléctricas, las concentraciones efectivas calculadas para los trabajadores para ambos sectores se encuentran en todos los casos por debajo de los 300 Bq/m³, límite actualmente legislado [CSN12a, CE514], bien debido, a que los factores de equilibrio son inferiores a $F = 0,4$, en el caso de las cuevas, o al bajo presencialismo, en las instalaciones hidroeléctricas.

[22.] Las dosis asociadas estimadas para las dos cuevas se encuentran por debajo de los 6 mSv anuales, cuando se tienen en cuenta un factor de conversión a dosis $DCF = 5 \text{ mSv/WLM}$, recomendado en la [ICR93]. En la cueva de Sant

Josep la dosis máxima recibida por uno de sus trabajadores es de 1,7 mSv y en la cueva del Rull de 2,0 mSv. Estas dosis aumentan a 6,4 mSv y 9,7 mSv anuales, respectivamente, cuando se tiene en cuenta el DCF recomendado para cuevas por el [ICR17] $DCF = 24 \text{ mSv/WLM}$.

[23.] Las dosis asociadas a los trabajadores de las instalaciones eléctricas estudiadas varían entre 0,20 y 4,17 mSv al año, si se tiene en cuenta el tiempo de permanencia real y con un $DCF = 20 \text{ mSv/WLM}$, que es el recomendado por el para instalaciones subterráneas diferentes de minas o cuevas. Y solo en una de las instalaciones se sobrepasarían si los trabajadores se encontraran la jornada laboral completa en su interior.

[24.] En las centrales donde no existe homogeneidad de radón en las diferentes plantas es importante registrar, además de la permanencia en la instalación, la zona en la que cada trabajador se encuentre, ya que las dosis estimadas pueden ser hasta un 30 % diferentes si se tiene en cuenta una permanencia media en toda la instalación, tanto por subestimación como por sobrestimación. Sobre todo cuando se producen desviaciones a las condiciones normales de trabajo, ya que hemos visto que es cuando se pueden producir incrementos de concentración de radón, y además normalmente, por las tareas que los trabajadores realizan, también es cuando más tiempo permanecen en la instalación.

[25.] Los últimos DCF recomendados por el ICRP son cinco veces mayores a los anteriores, por lo que las dosis que se calculan con estos también lo son. Estos DCF han sido calculados por el ICRP con las condiciones de descendientes del radón mayoritarias encontradas de la bibliografía. Las variaciones de factor de equilibrio que hemos encontrado en las dos cuevas estudiadas indican que el comportamiento de los descendientes del radón es muy diferente en las diferentes estaciones, y por tanto, las condiciones de tamaño y distribución de partículas en el ambiente también debe serlo. Estas dos cuevas muestran, además, un patrón diferente entre ellas y que se desvía de las condiciones «normales» medias que son tomadas en la bibliografía. En las instalaciones eléctricas, donde no se ha determinado el factor de equilibrio, este también podría ser variable aunque probablemente las diferencias sean mínimas debido a la «artificialidad» de la construcción, al igual que ocurre con la concentración de radón. En todo caso consideramos, que debido a que las condiciones de las partículas pueden ser tan variables, sería necesario medir su distribución y tamaño para calcular

unos DCF correctos a cada lugar en concreto, y estimar así unas dosis más acordes a la realidad de un edificio/cueva en concreto.

En cuanto a los resultados encontrados en las aguas estudiadas en la Comunidad Valenciana:

[26.] Todas las muestras, a excepción de una, tienen concentraciones de radón, y tal como se esperaba debido a su litografía, inferiores a 100 Bq/L. Las concentraciones de radón encontradas en las aguas de la Comunidad Valenciana siguen una distribución lognormal, con valores que van, en su mayoría, por debajo del límite de detección (1 Bq/L) hasta los 230 Bq/L hallados en una muestra de agua de la marjal de Peñíscola. Quitando este valor, la media y la desviación geométrica del resto de aguas analizadas es de $6,4 \pm 3,0$ Bq/L.

[27.] Las cantidades de radón no se correlacionan al 100% con los mapas de predicción de radón. Ya que se han encontrado las cantidades más elevadas, en zonas donde no cabía esperarlas, 230 Bq/L en la marjal y 26 – 49 Bq/L en aguas de fuentes naturales de zonas calizas.

[28.] Las dosis por ingestión de radón que las aguas estudiadas podrían llegar a aportar en el caso de consumirlas son del orden de los μSv (0,05 – 2,1 μSv) y difícilmente podrían llegar a aportar al consumidor una dosis por ingestión superior a 0,1 mSv al año que se indica en la legislación sobre aguas de consumo [RD316] si no existe una actividad alfa o beta total, que es la debida al resto radionúclidos, que la supere.

[29.] Las dosis por inhalación que se podrían llegar a alcanzar en hogares donde se utilicen estas aguas se encuentran entre 6 y 260 μSv . Llegando hasta 1,2 mSv si se tienen en cuenta las aguas que no proceden de fuentes. Esta dosis por inhalación podría ser mucho mayores en industrias donde se trabaja con aguas subterráneas, ya que se utilizan mayores volúmenes de agua: balnearios, fabricación, envasadoras, papeleras, depuradoras, etc.

[30.] Por todas las razones explicadas en cuanto concentración de radón en las aguas de la Comunidad Valenciana, consideramos que futuros trabajos deberían estar encaminados en la medida de muchas más muestras de agua, que permitan conocer irregularidades y predecir lugares, sobre todo industrias donde se utilicen estas aguas, donde el público y los trabajadores podrían estar expuestos a altas concentraciones de radón por inhalación a pesar de ser zonas consideradas como de bajo riesgo.

Bibliografía

- [AG15] M. Alvarez-Gallego, E. García-Antón, A. Fernández-Cortés, S. Cueva y S. Sánchez-Moral *High radon levels in subterranean environments: monitoring and technical criteria to ensure human safety (case of Castañar cave, Spain)*. *Journal of environmental radioactivity* (2015) **145** 19–29.
- [Ali14] B. Alicja y S. Bogdan *Activity disequilibrium between ^{234}U and ^{238}U isotopes in natural environment*. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry* (2014) **300** 719–727.
- [Amo95] R. Amorós, J. Bolta, E. Navarro y C. Roldán *Radon levels in the valencian community (Spain). I. Results in the province of Valencia (1990–1991)*. *Journal of environmental radioactivity* (1995) **27** 125–131.
- [App10] J. Appleton y J. Miles *A statistical evaluation of the geogenic controls on indoor radon concentrations and radon risk*. *Journal of environmental radioactivity* (2010) **101** 799–803.
- [App13] J. D. Appleton *Radon in Air and Water. Essentials of Medical Geology: Revised Edition*. chap. 11, (Springer Netherlands 2013) 239–277.
- [Bah08] M. Bahtijari, J. Vaupotič, A. Gregorič, P. Stegnar y I. Kobal *Exposure to radon in the Gadime cave, Kosovo*. *Journal of Environmental Radioactivity* (2008) **99** 342–348.
- [Bem14] H. Bem, U. Plota, M. Staniszevska, E. M. Bem y D. Mazurek *Radon (^{222}Rn) in underground drinking water supplies of the Southern Grea-*

- ter Poland Region. Journal of radioanalytical and nuclear chemistry* (2014) **299** 1307–1312.
- [Bez12] M. Bezek, A. Gregorič, N. Kavasi y J. Vaupotič *Diurnal and seasonal variations of concentration and size distribution of nano aerosols (10-1100 nm) enclosing radon decay products in the Postojna cave, Slovenia. Radiation Protection Dosimetry* (2012) **152** 174–178.
- [BL16] R. Barbosa-Lorenzo, J. M. Barros-Dios, M. Raíces Aldrey, S. Cerdeira Caramés y A. Ruano-Ravina *Residential radon and cancers other than lung cancer: a cohort study in galicia, a spanish radon-prone area. European Journal of Epidemiology* (2016) **31** 437.
- [Can00] M. G. Cantaloub *Aqueous-organic partition coefficients for ^{222}Rn and their application to radon analysis by liquid scintillation methods*. Ph.D. thesis Oregon State University (2000).
- [CD17] A. Cuco Dinu, M. I. C Alugar, B. D. Burghele, O. A. Dumitru, C. Cosma y B. P. Onac *Radon levels in romanian caves: an occupational exposure survey. Environmental geochemistry and health* (2017) **39** 1085–1099.
- [CE189] *Directiva 89/106 del consejo de 21 de diciembre de 1988, relativa a la aproximación de las disposiciones legales, reglamentarias y administrativas de los Estados miembros sobre los productos de construcción*. DOUE, 11 de febrero de 1989, L. 40, pp. 12-21 (1989).
- [CE296] *Directiva 96/29/euratom del consejo de 13 de mayo de 1996. normas básicas relativas a la protección sanitaria de los trabajadores y de la población contra los riesgos que resultan de las radiaciones ionizantes*. DOUE, 29 de junio de 1996, L 159, pp. 0001 - 0114 (1996).
- [CE513] *Directiva 13/51 del euratom del consejo de 22 de octubre de 2013 por la que se establecen requisitos para la protección sanitaria de la población con respecto a las sustancias radiactivas en las aguas destinadas al consumo humano*. DOUE, 22 de Octubre de 2013, L. 296, pp. 12-26 (2013).

- [CE514] *Directiva 13/59 del consejo, de 5 de diciembre de 2013 , por la que se establecen normas de seguridad básicas para la protección contra los peligros derivados de la exposición a radiaciones ionizantes.* DOUE L 013, 17 de enero de 2014 (2014).
- [Cel18] S. Celaya, D. Rábago, I. Fuente, L. Quindós López, N. Bon Carreras, M. Trinidad Valero Castell, J. Luis Gutierrez Villanueva y C. Sainz *A simple national intercomparison of radon in water. Radiation Protection Dosimetry* (2018) **181** 343–349.
- [Che97] Y.-S. Cheng, T.-R. Chen, P. T. Wasiolek y A. Van Engen *Radon and radon progeny in the Carlsbad caverns. Aerosol science and technology* (1997) **26** 74–92.
- [Che18] Z. Chen, Y. Li, Z. Liu, J. Wang, X. Zhou y J. Du *Radon emission from soil gases in the active fault zones in the capital of china and its environmental effects. Scientific reports* (2018) **8** 1–12.
- [Che19] J. Chen *A discussion on issues with radon in drinking water. Radiation Protection Dosimetri* (2019) **185** 526–531.
- [Chu96] T.-C. Chu y H.-L. Liu *Simulated equilibrium factor studies in radon chamber. Applied radiation and isotopes* (1996) **47** 543–550.
- [Coc13] S. Cockenpot, O. Radakovitch, P. Baudron, B. Arfib, F. Lopez-Castejon, A. Mayer, J. Gilabert, J. G. Arostegui, C. Leduc, C. Claude *et al. Estimation of submarine groundwater discharges using radon and radium isotopes in the mar menor lagoon (Spain) and the port-Miou Calanque (France) in Conference paper:40th CIESM ConferenceAt: Marseille, France* (2013).
- [Coh83] Cohen y Cohen *Theory and practice of radon monitoring by adsorption in charcoal. Health Physics* (1983) **45** 501–508.
- [CSN98] CSN *Medidas de radón en viviendas españolas. Caracterización de sus fuentes.* Tech. Rep. 6 Consejo de Seguridad Nuclear.ODE 04-02 (1998).

- [CSN00] CSN *Niveles de tasa de exposición a la radiación gamma natural medidas a un metro del suelo correspondiente a la España peninsular* Tech. rep. Proyecto MARNA. Mapa de radiación gamma natural. Consejo de Seguridad Nuclear. (2000).
- [CSN10] CSN *Guía de Seguridad GSG-11.01: Directrices sobre la competencia de los laboratorios y servicios de medida de radón en aire* (2010).
- [CSN12a] CSN *Criterios radiológicos para la protección frente a la exposición a la radiación natural* (2012).
- [CSN12b] CSN *Dosis, efectos, riesgos*. Tech. rep. Consejo de Seguridad Nuclear (2012).
- [CSN12c] CSN *Guía de Seguridad GSG-11.04: Metodología para la evaluación de exposición al radón en lugares de trabajo* (2012).
- [CSN16] CSN *Estudio de la instrumentación de vigilancia radiológica ambiental y de medida de radón en condiciones ambientales extremas*. Tech. rep. Colección Documentos I+D 22. (2016).
- [Dar05] S. Darby, D. Hill, A. Auvinen, J. M. Barros-Dios, H. Baysson, F. Bochicchio y otros *Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 european case-control studies*. *BMJ (Clinical research ed.)* (2005) 330–485.
- [Dar06] S. Darby, D. Hill, H. Deo, A. Auvinen, J. M. Barros-Dios y otros *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* (2006) **32 Suppl 1** 1–83.
- [DF13] I. Díaz-Francés, J. Mantero, G. Manjón, J. Díaz y R. García-Tenorio *^{210}Po and ^{238}U isotope concentrations in commercial bottled mineral water samples in Spain and their dose contribution*. *Radiation protection dosimetry* (2013) **156** 336–342.

- [Due11] C. Dueñas, M. C. Fernández, S. Cañete, M. Pérez y E. Gordo *Seasonal variations of radon and the radiation exposure levels in Nerja cave, Spain. Radiation Measurements* (2011) **46** 1181–1186.
- [Dum15] O. A. Dumitru, B. P. Onac, J. J. Fornós, C. Cosma, A. Ginés, J. Ginés y A. Merino *Radon survey in caves from Mallorca island, Spain. Science of the Total Environment* (2015) **526** 196–203.
- [Esp15] G. Espinosa y L. Tommasino *Surface-deposition and distribution of the radon (^{222}Rn and ^{220}Rn) decay products indoors. Physics Procedia* (2015) **80** 101–104.
- [FC11] J. L. Ferrero Calabuig, S. Martínez Sanchís, T. Cámara García y V. Delgado Belmar *Estudio dosimétrico en una instalación con altas concentraciones de radón. in Calidad y seguridad. XVIII CONGRESO NACIONAL DE SEFM XIII CONGRESO NACIONAL DE SEPR., (Sevilla2011)* 50.
- [Fle82] R. L. Fleischer *Alpha-recoil damage and solution effects in minerals: uranium isotopic disequilibrium and radon release. Geochimica et Cosmochimica Acta* (1982) **46** 2191–2201.
- [Fle83] R. L. Fleischer *Theory of alpha recoil effects on radon release and isotopic disequilibrium. Geochimica et Cosmochimica Acta* (1983) **47** 779–784.
- [Fon08] L. Font, C. Baixeras y V. Moreno *Indoor radon levels in underground workplaces of Catalonia Spain. Radiation Measurements* (2008) **43** 467–470.
- [Fon15] E. Fonollosa, A. Penalver, F. Borrul y C. Aguilar *Radon in spring waters in the south of Catalonia. Journal of environmental radioactivity* (2015) **151** 275–281.
- [Fue15] I. Fuente, L. S. Quindós, L. Quindós, W. Martín-Rosales, M. López-Chicano y J. Benavente-Herrera *Contenido de radón en aire en la gruta de las Maravillas (Aracena): Primeros resultados. in CUEVA-TUR 2014 I Congreso Iberoamericano y V Congreso Español sobre Cuevas Turísticas Iberoamérica Subterránea. vol. 8* (2015).

- [Geo84] A. George *Passive, integrated measurement of indoor radon using activated carbon. Health physics* (1984) **46** 867–872.
- [Gra87] D. J. Gray y S. T. Windham *EERF standard operating procedures for ^{222}Rn measurement using charcoal canisters*. Tech. Rep. EPA 520-5-57-005 U.S. Environmental Protection Agency, Office of Radiation Programs, Eastern Environmental Radiation Facility (1987).
- [Gre14] A. Gregorič, J. Vaupotič y S. Šebela *The role of cave ventilation in governing cave air temperature and radon levels (Postojna cave, Slovenia) International Journal of Climatology* (2014) **34** 1488–1500.
- [GT13a] M. García-Talavera, A. García-Pérez, C. Rey y L. Ramos *Mapping radon-prone areas using γ -radiation dose rate and geological information. Journal of Radiological Protection* (2013) **33** 605.
- [GT13b] M. García-Talavera, J. Martín Matarranz, R. Gil de Mingo, J. García Cadierno y E. Suárez Mahou *El mapa predictivo de exposición al radón en españa*. Colección Informes Técnicos 38 CSN (2013).
- [GT19] M. García-Talavera y F. J. López Acevedo *Cartografía del potencial de radón de España*. Colección Informes Técnicos 51 CSN (2019).
- [Har12] J. D. Harrison y J. W. Marsh *Effective dose from inhaled radon and its progeny. Annals of the ICRP* (2012) **41** 378–388.
- [Hau81] E. Hauksson y J. G. Goddard *Radon earthquake precursor studies in iceland Journal of Geophysical Research: Solid Earth* (1981) **86** 7037–7054.
- [Hos07] M. Hosoda, M. Shimo, M. Sugino, M. Furukawa y M. Fukushi *Effect of soil moisture content on radon and thoron exhalation Journal of Nuclear Science and Technology* (2007) **44** 664–672.
- [IAE17] IAEA2017 *The environmental behaviour of polonium*. Tech. Rep. 484 IAEA, Viena (2017).
- [ICR77] ICRP *Radiation protection in uranium and other mines. ICRP Publication 24. Ann.ICRP 1 (1)*, (1977).

- [ICR84] ICRP *Principles for limiting exposure of the public to natural sources of radiation. ICRP Publication 39. Ann. ICRP 14 (1)* (1984).
- [ICR86] ICRP *Radiation protection of workers in mines. ICRP Publication 47. Ann. ICRP 16 (1)*. (1986).
- [ICR91] ICRP *Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP publication 60. Ann ICRP21*. (1991).
- [ICR93] ICRP *Protection against radon-222 at home and at work. ICRP publication 65. Ann. ICRP 23 (2)*. (1993).
- [ICR94] ICRP *Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP publication 66. Ann ICRP 24 (1-3)*. (1994).
- [ICR07] ICRP *Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP publication 103. Ann. ICRP 37. (2-4)* (2007).
- [ICR10] ICRP *Lung cancer risk from radon and progeny and statement on radon. ICRP publication 115. Ann. ICRP 40 (1)*. (2010).
- [ICR17] ICRP *Occupational intakes of radionuclides: Part 3. ICRP publication 137. Ann. ICRP 46 (3-4)*. (2017).
- [ISO15] ISO *EN-ISO13164-4:2015, Water quality radon-222 Part 4: Test method using two-phase liquid scintillation counting*. (2015).
- [ISO17] ISO *UNE-EN-ISO/IEC 17025:2017. Requisitos generales para la competencia de los laboratorios de ensayo y calibración*. (2017).
- [Job17] V. Jobbágy, T. Altzitzoglou, P. Malo, V. Tanner y M. Hult *A brief overview on radon measurements in drinking water. Journal of Environmental Radioactivity* (2017) **173** 18–24.
- [Job19] V. Jobbágy, H. Stroh, G. Marissens y M. Hult *Comprehensive study on the technical aspects of sampling, transporting and measuring radon-in-water. Journal of Environmental Radioactivity* (2019) **197** 30–38.
- [Job20] V. Jobbágy, H. Stroh, G. Marissens, P. Malo, M. Hult y otros *Technical report on the REM 2018 radon-in-water proficiency test*. Tech.

- rep. EUR 30127 EN, Publications Office of the European Union, Luxembourg (2020).
- [JV15] B. J. Juste Vidal, J. Ortiz Moragón, G. J. Verdú Martín y S. S. Martorell Alsina *Air radon concentration decrease in a waste water treatment plant Radiation Protection Dosimetry* (2015) **164** 497–501.
- [Ken02] G. Kendall y T. Smith *Doses to organs and tissues from radon and its decay products Journal of Radiological Protection* (2002) **22** 389–406.
- [Kes89] M. J. Kessler *Liquid Scintillation Analysis: science and technology.*, (Packard Instrument 1989).
- [Kow10] A. Kowalczyk y P. Froelich *Cave air ventilation and CO₂ outgassing by Radon-222 modeling: How fast do caves breathe? Earth and Planetary Science Letters* (2010) **289** 209–219.
- [Lar05] J. Lario, S. Sánchez-Moral, J. Canaveras, S. Cuezva y V. Soler *Radon continuous monitoring in Altamira cave (northern Spain) to assess user's annual effective dose. J. Environ. Radioact.* (2005) **80** 161–174.
- [Lar06] J. Lario, S. Sánchez-Moral, S. Cuezva, M. Taborda y V. Soler *High ²²²Rn levels in a show cave (Castañar de Ibor, Spain): Proposal and application of management measures to minimize the effects on guides and visitors. Atmospheric Environment* (2006) **40** 7395–7400.
- [Leg13] R. Leggett, J. Marsh, D. Gregoratto y E. Blanchardon *A generic biokinetic model for noble gases with application to radon Journal of Radiological Protection* (2013) **33** 413–432.
- [Leh17] S. Lehrer, P. H. Rheinstein y K. E. Rosenzweig *Association of radon background and total background ionizing radiation with alzheimer's disease deaths in u.s. states. Journal of Alzheimer's disease* (2017) **59** 737–741.
- [Llo68] A. C. Lloyd *Limits for qualitative detection and quantitative determination. application to radiochemistry Analytical chemistry* (1968) **40** 586–593.

- [Lóp08] López, M. Galán, Sánchez y A. Martín *Present status of ^{222}Rn in groundwater in Extremadura. Journal of environmental radioactivity* (2008) **99** 1539–1543.
- [Mar10] J. W. Marsh, J. D. Harrison, D. Laurier, E. Blanchardon, F. Paquet y M. Tirmarche *Dose conversion factors for radon: Recent developments. Health Physics* (2010) **99** 511–516.
- [Mar17] J. Martinez, B. Juste, J. Ortiz, S. Martorell y G. Verdu *Air radon equilibrium factor measurement in a waste water pre-treatment plant. Radiation Physics and Chemistry* (2017) **140** 20–24.
- [Mej12] M. Mejías, B. J. Ballesteros, C. Antón-Pacheco, J. A. Domínguez, J. Garcia-Orellana, E. Garcia-Solsona y P. Masqué *Methodological study of submarine groundwater discharge from a karstic aquifer in the western mediterranean sea Journal of Hydrology* (2012) **464** 27–40.
- [Mom06] B. Momcilovic, G. I. Lykken y M. Cooley *Natural distribution of environmental radon daughters in the different brain areas of an alzheimer disease victim. Molecular neurodegeneration* (2006) **1** 11.
- [Mor14] V. Moreno, J. Bach, C. Baixeras y L. Font *Radon levels in groundwaters and natural radioactivity in soils of the volcanic region of La Garrotxa, Spain. Journal enviromental radaoactivity* (2014) **128** 1–8.
- [Mur79] Y. Murakami y K. Horiuchi *Simultaneous determination method of radon-222 and radon-220 by a toluene extraction-liquid scintillation counter Journal of Radioanalytical Chemistry* (1979) **52** 275–283.
- [NAS99] NAS *Risk assessment of radon in drinking water* Tech. rep. National Academy of Sciences, Committee on Risk Assessment of Exposure to radon. Washington (DC): National Academies Press (US) (1999).
- [Neu11] J. S. Neuberger *Residential radon exposure and multiple sclerosis: a pilot study in Proc. 21st International Radon Symposium, American Association of Radon Scientists and Technologists, Orlando FL* (2011).

- [Pag03] P. Pagelkopf y J. Porstendörfer *Neutralisation rate and the fraction of the positive ^{218}Po -clusters in air Atmospheric Environment* (2003) **37** 1057–1064.
- [Pap19] C. Papachristodoulou, K. Stamoulis y K. Ioannides *Temporal variation of soil gas radon associated with seismic activity: A case study in nw greece Pure and Applied Geophysics* (2019) 1–16.
- [Pie15] B. Piedecausa y S. Chinchón *Radon measurements in the cave houses of Crevillente (Spain). Indoor and Built Environment* (2015) **24** 201–213.
- [PL16] R. Pérez-López, S. Sánchez-Moral, J. J. Martínez-Díaz, S. Cuezva, Á. Sánchez-Malo, E. Bañón, L. Quiles, A. Marcos, J. Carballo y M. Águila *Condiciones ambientales extremas de la sima del vapor: temperatura, traza isotópica de CH y CO y valores de radón Actas EspeleoMeeting Ciudad de Villacarrillo* (2016) **143** 149.
- [Pla16] C. Pla, S. Cuezva, E. Garcia-Anton, A. Fernandez-Cortes, J. C. Navarras, S. Sánchez-Moral y D. Benavente *Changes in the CO₂ dynamics in near-surface cavities under a future warming scenario: Factors and evidence from the field and experimental findings Science of The Total Environment* (2016) **565** 1151–1164.
- [PM99] C. Pinza-Molina, J. M. Alcaide, R. Rodriques-Bethencourt y J. Hernandez-Armas *Radon exposures in the caves of tenerife (canary islands) Radiation Protection Dosimetry* (1999) **82** 219–224.
- [Por96] J. Porstendörfer *Radon: Measurements related to dose. Environment International* (1996) **22** 563–583.
- [Por99] J. Porstendörfer y A. Reineking *Radon: Characteristics in air and dose conversion factors. Health Physics* (1999) **76** 300–305.
- [Por01] J. Porstendörfer *Physical parameters and dose factors of the radon and thoron decay products. Radiat. Prot. Dosim.* (2001) **94** 365–373.

- [Por02] J. Porstendörfer *Influence of physical parameters on doses from radon exposures*. in *International Congress Series* vol. 1225, (Elsevier2002) 149–160.
- [Por03] D. Porcelli y S. Peter. W *The behavior of U- and Th-series nuclides in groundwater* *Reviews in Mineralogy and Geochemistry* (2003) 317–362.
- [Por05] J. Porstendörfer, P. Pagelkopf y M. Gründel *Fraction of the positive ^{218}Po and ^{214}Pb clusters in indoor air*. *Radiation protection dosimetry* (2005) **113** 342–351.
- [Pri77] H. M. Prichard y T. F. Gesell *Rapid measurements of ^{222}Rn concentrations in water with a commercial liquid scintillation counter*. *Health Physics* (1977) **33** 577–581.
- [RA95] M. Rodríguez-Alvarez y F. Sánchez *Behavior of uranium along Jucar river (eastern Spain): Determination of $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ and $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratios*. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry* (1995) **190** 113–120.
- [Rab18] R. Rabi y L. Oufni *Evaluation of indoor radon equilibrium factor using cfd modeling and resulting annual effective dose*. *Radiation Physics and Chemistry* (2018) **145** 213–221.
- [RD1] *Real decreto 140/2003, de 7 de febrero, por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano*. Boletín oficial del estado, 7 de febrero de 2003, L4.
- [RD193] *Real decreto 1630/1992, de 29 de diciembre por el que se dictan disposiciones para la libre circulación de productos de construcción en aplicación de la directiva 89/106/cee* Boletín oficial del estado L 34, de 9 de febrero de 1993, pp 6358 a 3664 (1993).
- [RD110] *Real decreto 1439/2010 de 5 de noviembre, por el que se modifica el reglamento sobre protección sanitaria contra radiaciones ionizantes*. Boletín oficial del estado, de 18 de noviembre de 2010, L. 279, pp 96395 a 96398 (2010).

- [RD316] *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.* Boletín oficial del estado, 30 de julio de 2016, L183, pp 53106 a 53126 (2016).
- [RD701] *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 L 178, de 26 de julio de 2001, pp 27284 a 27393 (2001).
- [RM18] C. Rizo Maestre y V. Echarri Iribarren *The radon gas in underground buildings in clay soils. the plaza balmis shelter as a paradigm International journal of environmental research and public health* (2018) **15** 1004.
- [RM19] C. Rizo-Maestre, V. Echarri-Iribarren y A. Galiano-Garrigós *Ventilation as an indispensable tool for healthy constructions: Comparison of alicantes urban railway tunnels* Sustainability, Multidisciplinary Digital Publishing Institute,11,6205 (2019).
- [Rod12] V. Rodellas, J. García-Orellana, E. García-Solsona, P. Masqué, J. A. Domínguez, B. J. Ballesteros, M. Mejías y M. Zarroca *Quantifying groundwater discharge from different sources into a Mediterranean wetland by using ^{222}Rn and ^{226}Ra isotopes.* *Journal of Hydrology* (2012) **466-467** 11 – 22.
- [RR17] A. Ruano-Ravina, N. Aragonés, K. T. Kelsey, M. Pérez-Ríos, M. Piñeiro Lamas, G. López-Abente y J. M. Barros-Dios *Residential radon exposure and brain cancer: an ecological study in a radon prone area (Galicia, Spain)* Tech. Rep. 3595 Nature (2017).

- [RR19] A. Ruano-Ravina, C. Narocki, M. J. López-Jacob, A. G. Oliver, M. de la Cruz Calle Tierno, J. Peón-González y J. M. Barros-Dios *Indoor radon in spanish workplaces. a pilot study before the introduction of the european directive 2013/59/euratom* (2019) **33** 563–567.
- [Sán12] Sánchez, A. Martín, D. la Torre Pérez J, S. A. Ruano, Correa. y F. Naranjo *Radon in workplaces in Extremadura (Spain). Journal of environmental radioactivity* (2012) **107** 86–91.
- [Sch12] M. Schubert, A. Paschke, D. Bednorz, W. Bürkin y T. Stieglitz *Kinetics of the water/air phase transition of radon and its implication on detection of radon in water concentrations: Practical assessment of different on-site radon extraction methods Environmental science and technology* (2012) **46** 8945–8951.
- [Sco92] R. D. Scott, A. B. MacKenzie y W. R. Alexander *The interpretation of ^{238}U - ^{234}U - ^{230}Th - ^{226}Ra disequilibria produced by rock-water interactions Journal of Geochemical Exploration* (1992) **45** 323–343.
- [Sot95] J. Soto, P. L. Fernández, L. S. Quindós y J. Gómez-Arozamena *Radioactivity in spanish spas Science of The Total Environment* (1995) **162** 187 – 192.
- [Tar19] A. D. K. Tareen, M. S. A. Nadeem, K. J. Kearfott, K. Abbas, M. A. Khawaja y M. Rafique *Descriptive analysis and earthquake prediction using boxplot interpretation of soil radon time series data Applied radiation and isotopes* (2019) **154** 108861.
- [UNS00] UNSCEAR *Sources and effects of ionizing radiation*. Report to the general assembly United Nations, New York (2000).
- [UNS10] UNSCEAR *Sources and effects of ionizing radiation, united nations scientific committee on the effects of atomic radiation*. (UNSCEAR) 2008 Report, Volume I (2010).
- [UNS18] UNSCEAR *Sources, effects and risks of ionizing radiation (UNSCEAR) 2017 Report* Tech. Rep. 190 United Nations, Ney York (2018).

- [VAP] <https://www.icog.es/tyt/index.php/2016/07/analisis-radon-alhama-murcia/>.
- [vd] A. L. vall d'Ebo <https://lavalldebo.org/va/la-cova-del-rull/>.
- [Wan19] Y. Wang, W. Luo, G. Zeng y Wang *High Rn concentrations and dynamics in Shawan cave, southwest China. Journal of environmental radioactivity* (2019) .
- [WHO09] WHO *Handbook on Indoor Radon*, (World Health Organization2009).
- [Yu96] K. N. Yu, E. C. M. Young y K. C. Li *A study of factors affecting indoor radon properties. Health Physics* (1996) **71** 179–184.

