



UNIVERSIDAD DE CANTABRIA

TESIS DOCTORAL

**Estudio del comportamiento del ^{222}Rn en
los procesos de recarga-descarga
en acuíferos: simulación en laboratorio
y aplicación a un caso real**

Autor: Santiago Celaya González

Director: Luis Santiago Quindós Poncela

Codirector: Ismael Fuente Merino

Santander

2017



LUIS SANTIAGO QUINDÓS PONCELA, Catedrático de Radiología y Medicina Física del Departamento de Ciencias Médicas y Quirúrgicas de la Universidad de Cantabria.

ISMAEL FUENTE MERINO, contratado de investigación del Departamento de Ciencias Médicas y Quirúrgicas de la Universidad de Cantabria y Profesor Contratado-Doctor acreditado por la ANECA.

CERTIFICAN:

Que el presente trabajo titulado:” **Estudio del comportamiento del ^{222}Rn en los procesos de recarga-descarga en acuíferos: simulación en laboratorio y aplicación a un caso real** “ha sido desarrollado por **D.Santiago Celaya González** bajo su supervisión, y reúne los requisitos necesarios para optar al grado de Doctor.

Y para que conste a todos los efectos oficiales, firman el presente certificado en Santander a 22 de Noviembre de 2017.

Agradecimientos

Es el momento de agradecer con estas líneas a todos aquellos que han colaborado para que sea posible la consecución de un objetivo que hasta hace bien poco me resultaba extraño y muy alejado de mi camino.

Al Dr. Luis Santiago Quindós Poncela, director de esta tesis, por brindarme la oportunidad de unirme al Grupo Radón, abriéndome una puerta que nunca pensé tomar y al que estaré eternamente agradecido por su esfuerzo y dedicación no sólo en la consecución de este objetivo sino en muchos otros de largo recorrido.

Al Dr. Ismael Fuente Merino, codirector de esta tesis, por su tranquilidad y conocimiento que siempre son muy bien recibidos, y que me han permitido llevar a buen puerto este barco.

Al Dr. Carlos Sainz Fernández, codirector del Grupo Radón, por tener su apoyo, dedicación, conocimiento y cercanía siempre que ha sido necesario no sólo en esta tesis sino en el trabajo diario.

Agradecer al Director del Balneario de Las Caldas de Besaya sus facilidades para desarrollar el trabajo necesario en sus instalaciones que permitió el desarrollo de parte de este estudio.

De igual forma resulta necesario agradecer enormemente al resto de mis compañeros del Grupo Radón su colaboración en el desarrollo de esta tesis donde ha resultado necesario un poco de todos para lograrla. Muchas gracias King, Jorge, Kike, Alicia, Dani....

Gracias Papá, Gracias Mamá porque sois responsables de como soy y por tanto de mis logros y de mis derrotas. Me habéis enseñado a saborear los premios sin alardes y a afrontar los problemas de frente. Gracias por ayudar a convertirme en lo que soy.

Para terminar, agradecerte Guapiña el apoyo diario durante estos años que comenzaron como un sprint y que se han convertido en una maratón en la que vamos uniendo participantes que la dan sentido:

- Yorky: cascacarrabias pero siempre dispuesto a agradecernos todo.
- Erik: el terremoto de la casa pero como dice tu madre una fotocopia mía.
- Pau: te esperamos muy prontito.

a todos vosotros ¡muchas gracias!

ÍNDICE

Índice:

0. Introducción	1
1. El radón.....	5
1.1. Series radiactivas.....	7
1.2. El uranio.....	8
1.3. El radio.....	10
1.4. El radón.....	10
1.4.1. Características físicas y químicas.....	10
1.4.2. Proceso de emanación del radón	11
1.4.3. Radón en agua	13
1.4.4. Riesgos del radón.....	17
1.4.5. Legislación europea y nacional sobre radón en agua	18
2. Antecedentes del radón como trazador	21
2.1. Introducción.....	23
2.1.1. Acuíferos sobre rocas ígneas	25
2.1.2. Acuíferos sobre rocas sedimentarias.....	26
2.1.3. Acuíferos sobre rocas metamórficas.....	26
2.2. Descargas en aguas marinas.....	27
2.3. Descargas en aguas superficiales	29
2.4. Recarga de acuíferos	30
3. Técnicas e instrumentos de medida	33
3.1. Medida de ^{222}Rn en aire	35
3.1.1. Radon scout.....	35
3.1.2. RTM 2100	36
3.1.3. RAD7 radon detector	41
3.1.4. ATMOS 12 DPX.....	43
3.2. Medida de ^{222}Rn en agua	46
3.2.1. Triathler 425-034.....	46
3.2.2. Espectrómetro gamma HPGe(Li).....	51

4. Diseño del simulador, fuentes de ^{222}Rn en agua y toma de muestras.....	55
4.1. Construcción del contenedor.....	57
4.2. Puesta a punto de fuentes de ^{222}Rn en agua.....	58
4.2.1. Cubeta transparente.....	59
4.2.2. Fuente de ^{222}Rn para el agua del contenedor.....	61
4.2.3. Nevera portátil.....	65
4.3. Puesta en marcha del simulador.....	66
4.4. Toma de muestras.....	69
4.5. Preparación de muestras.....	69
5. Calibraciones, verificaciones e intercomparaciones de los equipos de medida.....	71
5.1. Control de calidad de la técnica de centelleo líquido.....	73
5.1.1. Estudio de estanqueidad de los viales de cristal.....	73
5.1.2. Calibración.....	75
5.1.3. Ejercicios de intercomparación.....	80
5.2. Control de calidad de la técnica de espectrometría gamma.....	82
5.2.1. Calibración en energías.....	83
5.2.2. Calibración en eficiencia.....	84
5.2.3. Intercomparación con Triathler 425-034.....	86
5.2.4. Ejercicios de intercomparación.....	87
5.3. Calibración del KIT de medida de ^{222}Rn en agua del RTM 2100.....	88
5.3.1. Calibración respecto al Triathler 425-034.....	88
5.3.2. Calibración respecto al espectrómetro gamma HPGe(Li).....	90
5.4. Calibración del Radon scout.....	92
5.5. Calibración del RAD7 radon detector.....	94
6. Modelos matemáticos y diseño de experimentos.....	97
6.1. Modelos matemáticos.....	99
6.1.1. Modelo de Compartimento Cerrado: MCC.....	100
6.1.2. Modelo de Compartimento Abierto: MCA.....	103
6.2. Diseño de experimentos.....	105
6.2.1. Diseño de experimentos en el acuífero simulado.....	105
6.2.2. Diseño del estudio del caso real.....	114

7. Resultados de los episodios analizados	119
7.1. Resultados en el acuífero simulado	121
7.1.1. Experimento 1: crecimiento inicial acuífero	121
7.1.2. Experimento 2: descarga y recarga rápidas	122
7.1.3. Experimento 3: descarga rápida y recarga progresiva	135
7.1.4. Experimento 4: descarga y recarga progresivas	140
7.2. Resultados en el caso real: Las Caldas de Besaya	145
7.2.1. 1 ^{ra} Recarga: Marzo 2012.	145
7.2.2. 2 ^{da} Recarga: Abril 2012	147
7.2.3. 3 ^{ra} Recarga: Mayo 2012	150
7.2.4. 4 ^{ta} Recarga: Junio 2012.....	152
7.2.5. 5 ^{ta} Recarga: Julio 2012	154
8. Análisis de los resultados	157
8.1. Acuífero simulado.....	159
8.1.1. Parámetros de los episodios analizados	159
8.1.2. Concentración de ²²² Rn del agua de recarga	160
8.1.3. Análisis de los resultados	162
8.2. Balneario de Las Caldas de Besaya	164
8.2.1. Parámetros de los episodios analizados	164
8.2.2. Concentración de ²²² Rn del agua de recarga	165
8.2.3. Análisis de los resultados	166
9. Conclusiones.....	167
Anexo.....	171
Anexo I: Propagación de errores para el cálculo de la concentración del agua de recarga.....	173
Bibliografía.....	175

CAPÍTULO

0 Introducción

El radón presenta unas propiedades químicas y físicas, que unidas a la baja probabilidad de que su presencia tenga un origen antropogénico, a la diferencia de concentración significativa existente entre las aguas superficiales y las aguas profundas, y a la disponibilidad técnica de controlar su medida en continuo le convierten en un trazador ideal para el estudio de las recargas y descargas que tienen lugar en los acuíferos. Por estas razones, el objetivo prioritario de esta tesis es analizar la dinámica que experimentan los acuíferos durante los procesos habituales de recarga y descarga a través de la utilización del ^{222}Rn como trazador.

El **Capítulo 1** está dedicado íntegramente al ^{222}Rn explicando desde su origen hasta su peligrosidad, pasando por la vigente legislación tanto a nivel europeo como nacional y terminando el mismo con las características que presenta y que propician su utilización como trazador.

En la primera parte del **Capítulo 2** se explican los diferentes tipos de rocas existentes en nuestra corteza terrestre y su relación con el ^{222}Rn que determina su presencia o ausencia en acuíferos. En la segunda parte del capítulo se ha realizado una revisión bibliográfica de las publicaciones existentes sobre descargas y recargas de acuíferos clasificándose los procesos de descarga en función de si el destino de las aguas son el mar o aguas superficiales.

Las técnicas de medida empleadas en el análisis de todos los episodios estudiados en esta tesis son descritos en el **Capítulo 3**, donde se realiza una descripción técnica de cada instrumento con especial atención a los dos equipos empleados en la medida de radón en agua (Triathler y Espectrómetro gamma HPGe (Li)) para posteriormente en el **Capítulo 5** realizar una descripción de las verificaciones, calibraciones y ejercicios de intercomparación realizados a los equipos y que permiten garantizar la calidad de las medidas realizadas durante el estudio.

La construcción del acuífero simulado junto con todas las fuentes de ^{222}Rn en agua empleadas en este estudio se detallan en la parte inicial del **Capítulo 4**. La segunda parte del mismo se ha empleado para la descripción de su puesta en marcha junto con

la metodología empleada tanto en la toma de muestras como en su preparación para adecuarlas a cada instrumento de medida.

El **Capítulo 6** se ha destinado en su parte inicial a explicar con detenimiento el modelo matemático empleado para caracterizar la dinámica del acuífero durante los procesos de recarga-descarga y que permite determinar la concentración de ^{222}Rn que proporciona el agua de recarga. La segunda parte del capítulo se ha dedicado a diseñar con detalle los episodios de recarga-descarga tanto a escala de laboratorio como en el caso real del Balneario de Las Caldas de Besaya (Cantabria).

La aplicación de los modelos de Compartimento Cerrado (MCC) y de Compartimento Abierto (MCA) a todos los episodios diseñados tanto para el acuífero simulado como para el Balneario de Las Caldas de Besaya se describen detalladamente en el **Capítulo 7**.

En el **Capítulo 8**, se realiza un análisis de los resultados obtenidos en el capítulo anterior determinando la concentración del agua de aporte para poder diferenciar si su origen es superficial (agua de lluvia) o subterráneo (agua enriquecida en ^{222}Rn).

El **Capítulo 9** se dedica a recoger las conclusiones obtenidas del trabajo realizado en esta tesis sobre el empleo de ^{222}Rn como trazador para analizar la dinámica en los procesos de recarga-descarga de acuíferos.

Al final del documento se recoge un anexo con información específica de interés relacionada con el capítulo 8.

CAPÍTULO

1 El radón

1.1 Series radiactivas

1.2 El uranio

1.3 El radio

1.4 El radón

1.4.1 Características físicas y químicas

1.4.2 Proceso de emanación del radón

1.4.3 Radón en agua

1.4.4 Riesgos del radón

1.4.5 Legislación europea y nacional sobre radón en agua

1.1 Series radiactivas

El origen de la mayoría de los elementos radioactivos naturales presentes en nuestra corteza terrestre tiene su origen en las denominadas series o cadenas naturales de desintegración que se encuentran encabezadas por los tres radionúclidos primarios más pesados ^{238}U , ^{235}U y ^{232}Th ; terminando todas en isótopos estables del plomo: ^{206}Pb , ^{207}Pb y ^{208}Pb . Existe una cuarta serie radiactiva que debiera haberse extinguido, se encuentra encabezada por el ^{237}Np y termina en el ^{209}Pb , pero la realización de pruebas con armamento nuclear ha originado su reaparición.

El proceso de desintegración radiactiva de estos radionúclidos primarios origina uno nuevo que a su vez sufre este proceso de desintegración radiactiva de forma que el proceso continúa hasta alcanzar los núclidos estables del plomo ya mencionados.

Las tres series radiactivas vigentes (^{238}U , ^{235}U y ^{232}Th) presentan 18,13 y 10 radionúclidos, que pueden considerarse de forma genérica en equilibrio radiactivo con sus respectivos cabezas de serie y constituyen junto con el ^{40}K , la principal fuente del contenido radiactivo en rocas (en especial las series del ^{238}U y el ^{232}Th), motivo por el cual son los que habitualmente se tienen en cuenta en los estudios de radiactividad natural en materiales de la corteza terrestre [GOM95].

En las tres series naturales aparecen isótopos del radón:

- a) en la serie del ^{235}U se encuentra el ^{219}Rn conocido como *actinón* con un periodo de semidesintegración de 3.96 s, pero en cantidades muy despreciables en la naturaleza debido que junto a su pequeño $T_{1/2}$ (periodo de semidesintegración) se une la poca presencia de ^{235}U en la corteza terrestre, un 0.72% frente al 99.27% del ^{238}U [CSN01].
- b) en la serie del ^{232}Th aparece el ^{220}Rn , conocido como *torón*, que debido fundamentalmente a su corto periodo de semidesintegración (55.6 s) [CHU99] tiene relativamente poca importancia, a excepción de lugares donde pueden existir concentraciones significativas debido fundamentalmente a la presencia de suelos con elevado contenido en torio.

- c) en la del ^{238}U , procedente de la desintegración del ^{226}Ra , se encuentra el ^{222}Rn conocido propiamente como radón, con un periodo de semidesintegración de 3.8235 días [CHU99]. En la Fig.1 puede verse la cadena de desintegración del ^{238}U a la que pertenece el ^{222}Rn objeto de estudio en esta tesis.

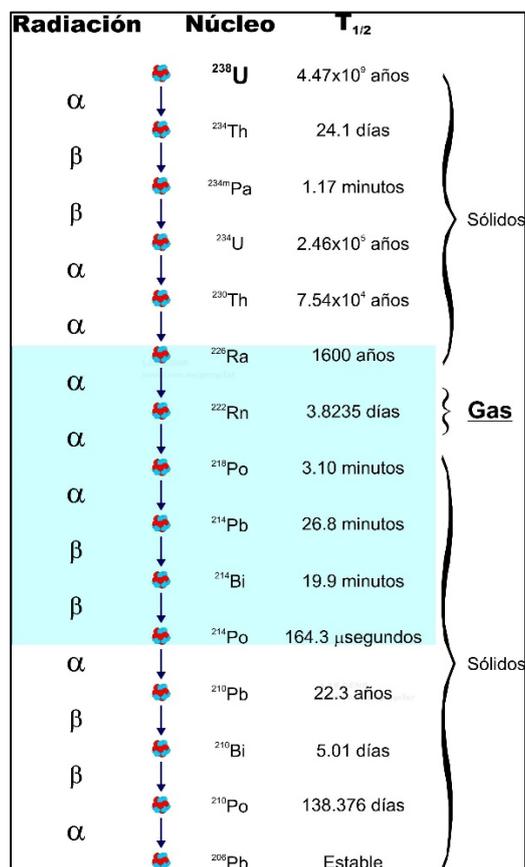


Fig.1: Serie radiactiva del ^{238}U .

1.2 El uranio

El uranio natural tiene un número atómico $Z=92$, con un peso atómico de 238.03 umas y con una actividad estimada por cada 1 ppm de uranio de $12.3 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ [RPD88]. En la naturaleza se encuentra presente a través de 3 isótopos distintos:

- a) el ^{235}U , cabeza de una de las series de desintegración, con un $T_{1/2}$ de $7.038 \cdot 10^8$ años, y con una presencia porcentual muy baja 0.7204% [CHU99] comparada con el mayoritariamente presente ^{238}U .

- b) el ^{234}U , se trata de un elemento intermedio de la serie del ^{238}U , tiene una presencia porcentual casi despreciable del 0.005% y un $T_{1/2}$ de $2.455 \cdot 10^5$ años [CHU99].
- c) el ^{238}U , cabeza de la serie radiactiva de mayor interés para el estudio de ^{222}Rn , tiene una presencia mayoritaria con respecto a los otros dos isótopos del 99.2742% y un $T_{1/2}$ de $4.468 \cdot 10^9$ años [CHU99].

Se puede afirmar que el uranio se encuentra presente en nuestro planeta, con un contenido medio en la corteza terrestre de 2 ppm o 2 gramos por tonelada [HAN69]. Por sus valores medios de concentración se trata de un elemento minoritario aunque no puede considerarse escaso. Estos valores medios pueden verse en la **Tab.1** donde se indica el contenido en ppm del uranio en distintos tipos de rocas y minerales de la corteza terrestre así como en mares, océanos, acuíferos y aguas superficiales.

Tab.1: Contenido en uranio [IAE88; CSN01].

Localización	U (ppm)
Ultrabásicas	0.02
Arenitas y ruditas	1.5
Arcillas y pizarras	3.5
Calizas, dolomías y sideritas	1.5
Yesos y anhidritas	0.1
Mármoles	0.5
Cuarzo	1.7
Mar Caspio	3-10 ppb
Océano Atlántico y Pacífico	1.15 ppb
Acuíferos mineralizados	10-460 ppb
Aguas superficiales	0.03-120 ppb

A causa de su actividad química no existe libre en la naturaleza pero se trata de un elemento bastante presente en todo tipo de materiales geológicos. Sus valencias más estables con las que actúa en la naturaleza son la +4 y +6 que corresponden a los iones U^{4+} y UO_2^{2+} , de forma que en las condiciones oxidantes existentes en la superficie terrestre da lugar a compuestos de valencia +6 que se caracterizan por tener mucha movilidad y formar numerosas especies minerales, mientras que cuando las condiciones ambientales resultan ser reductoras se originan precipitados insolubles de valencia +4.

Estos complejos de valencia +6 pueden ser transportados diluidos por aguas superficiales y aguas subterráneas que al pasar por un medio reductor forman sales de uranio+4 que resultan ser insolubles. Su precipitación origina la formación de depósitos secundarios de uranio y consecuentemente fuentes de radón donde originariamente no existía su presencia ni la de sus descendientes.

1.3 El radio

La presencia en suelos y en la corteza terrestre de los dos principales isótopos del radio, el ^{226}Ra de la serie del ^{238}U con un $T_{1/2}$ de 1600 años y el ^{228}Ra de la del ^{232}Th con un $T_{1/2}$ de 5.75 años [CHU99], depende fundamentalmente del comportamiento geoquímico de sus respectivos cabezas de serie. La situación descrita en el apartado anterior sobre la formación de depósitos secundarios debido a la precipitación de sales insolubles de uranio lejanos al depósito principal frente a las características estáticas por la insolubilidad que presenta el ^{232}Th , da como resultado una mayor presencia de ^{226}Ra en la corteza terrestre frente al ^{228}Ra que suele quedar localizado en los lugares originales donde se localiza su radionúclido primario.

La imposibilidad de formar complejos solubles junto con el hecho de ser un catión exclusivamente divalente, facilita su eliminación del agua tanto en condiciones reductoras como oxidantes, básicamente a través de 3 mecanismos de fijación:

- a) su adsorción sobre hidróxidos de Fe o Mn.
- b) su adsorción sobre arcillas o materia orgánica.
- c) su coprecipitación con sulfatos de Mg, Ba y sobre todo con CO_3Ca .

La importancia del ^{226}Ra en este estudio está en su desintegración a partir de la emisión de una partícula alfa y la aparición consecuentemente del ^{222}Rn .

1.4 El radón

1.4.1 Características físicas y químicas

El radón, con número atómico $Z=86$, es un elemento químico que en la tabla de Mendeleiev se encuentra situado en la familia de los gases nobles o gases raros, nombre que responde a la ausencia de reactividad química. Su estructura atómica es

tan estable que no necesita combinarse con ningún otro elemento químico, por lo que no se encuentra en el medio formando compuestos [QUI95].

El ^{222}Rn , como isótopo del radón, presenta sus mismas características químicas, que hacen que sea un gas inerte, inodoro, incoloro e insípido con unas características físicas como las descritas en la **Tab.2** [QUI95]:

Tab.2: Datos físicos del radón.

Densidad a 0°C y 1 atm	9.73 kg·m ⁻³
Coefficiente de difusión en aire	0.1 · 10 ⁻⁵ m ² ·s ⁻¹
Viscosidad a 20°C y 1 atm	229.0 micropoises
Solubilidad en varios medios a 20°C y 1atm de presión parcial	agua: 230· 10 ⁻⁶ m ³ ·kg ⁻¹
	glicerina: 13.2· 10 ⁻⁶ m ³ ·kg ⁻¹
	aceite: 29· 10 ⁻⁶ m ³ ·kg ⁻¹
	alcohol etílico: 7.4· 10 ⁻⁶ m ³ ·kg ⁻¹

1.4.2 Proceso de emanación del radón

Su concentración en el aire exterior es prácticamente despreciable, mientras que en el interior de edificaciones y espacios cerrados naturales como pozos, galerías, cuevas... puede llegar a ser elevada [LAR06]. Su localización en el terreno debería coincidir directamente con la distribución de su progenitor el ^{226}Ra , que en su proceso de desintegración a través de la emisión de una partícula α genera el núcleo de ^{222}Rn acompañado de un fuerte retroceso que le permite escapar de las redes cristalinas y emigrar a través de poros y fracturas que presenta el material [GOM95]. La fracción de ^{222}Rn formada en el terreno por desintegración del ^{226}Ra que logra escapar ocupando el volumen de poros disponible se denomina factor de emanación. Este factor depende fundamentalmente de los siguientes factores físicos:

- a) la distribución del radio en los granos minerales, de forma que si se encuentra localizado en la parte externa tendrá un factor de emanación mucho mayor que si el radio se encuentra en la parte interior del grano.
- b) la distribución de tamaños de los granos del material que constituyen el terreno, puesto que cuanto menor tamaño tengan mayor dificultad de movimiento tendrá para moverse el ^{222}Rn .

- c) el contenido de humedad en el medio, teniendo en cuenta que en un medio no saturado la emanación aumenta al incrementar la humedad.
- d) la temperatura, donde un aumento de temperatura provoca un incremento de la emanación.
- e) la presión atmosférica, que afecta a la longitud de emisión del átomo de ^{222}Rn .
[TAN78; SAK11].

Una vez el ^{222}Rn se encuentra localizado en los poros, los mecanismos a través de los cuales logra desplazarse por el terreno son fundamentalmente dos:

- a) por difusión molecular hacia lugares del terreno donde su concentración sea menor.
- b) por mecanismos convectivos al ser arrastrado por el agua o por el aire que se encuentran presentes en los poros, desde zonas de alta presión a zonas de baja presión. Se trata de un proceso más rápido e importante que el originado por difusión molecular.

La forma de conocer la actividad de ^{222}Rn que se genera en la superficie de un terreno es a través de la tasa de exhalación por unidad de superficie y tiempo, conocida como R que se puede estimar según la **Eq.0** deducida a partir de la ecuación de difusión:

$$R = C_{Ra} \cdot \rho \cdot f \cdot \sqrt{\lambda_{Rn} \cdot D} \cdot \tanh\left(\frac{z}{\sqrt{D/\lambda_{Rn}}}\right) \quad (\text{Eq.0})$$

En la que:

R es la tasa de exhalación del ^{222}Rn en $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$.

C_{Ra} es la concentración de ^{226}Ra en $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$.

λ_{Rn} es la constante de desintegración del ^{222}Rn en s^{-1} .

f es el coeficiente de emanación del material.

ρ es la densidad del material en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

D es el coeficiente de difusión efectiva del material en $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$.

z es el espesor del suelo en m.

Teniendo en cuenta el desarrollo en serie de la $\tanh(x)$ (**Eq.1**) cuando z es mucho menor que la Longitud de Difusión (L):

$$\tanh\left(\frac{z}{\sqrt{D/\lambda_{Rn}}}\right) = \frac{z}{\sqrt{D/\lambda_{Rn}}} - \frac{\left(\sqrt{D/\lambda_{Rn}}\right)^3}{3} + 2 \frac{\left(\sqrt{D/\lambda_{Rn}}\right)^5}{15} + \dots \quad (\text{Eq.1})$$

si se considera únicamente el primer término de esta serie (puesto que los términos siguientes tienden a cero) la **Eq.0** queda simplificada a la **Eq.2** que permite conocer la exhalación de radón en función del espesor del suelo (z) en metros, para z mucho menor que la Longitud de Difusión (L). Siendo L , **Eq.3**, la distancia característica en metros que viajan los átomos de ^{222}Rn durante un periodo igual a su vida media.

$$R = C_{Ra} \cdot \rho \cdot f \cdot \lambda_{Rn} \cdot z \quad (\text{Eq.2})$$

$$L = \sqrt{D/\lambda_{Rn}} \quad (\text{Eq.3})$$

La permeabilidad es un parámetro del suelo a tener muy en cuenta cuando se estudia la exhalación de ^{222}Rn en un terreno, puesto que una baja porosidad implica que los espacios porosos no se encuentran intercomunicados impidiendo su movimiento [\[SUA97\]](#).

Una vez generado el ^{222}Rn , bien puede escapar del suelo hasta llegar al aire fijándose en las partículas en suspensión del mismo, o bien al agua que es el medio sobre el que se centra este estudio.

1.4.3 Radón en agua

Al tratarse de un gas, considerando sus efectos sobre la salud, su estudio se ha centrado siempre en la determinación de sus concentraciones en aire debido al mayor daño que generan sus efectos por inhalación frente a su ingestión por su presencia en

agua, principalmente en la minería subterránea, en puestos de trabajo y en viviendas. Pero las aguas subterráneas son también una ruta muy importante de acumulación y transporte de ^{222}Rn y por ello algunos estudios han mostrado que altos niveles de ^{222}Rn disueltos en agua son una fuente de dosis de radiación al tracto gastrointestinal y al cuerpo completo debido a la inhalación como consecuencia de su desorción del agua en el que se encuentra disuelto [GAL04].

Existen fundamentalmente 2 mecanismos por los que el ^{222}Rn puede acabar disuelto en agua:

- a) porque se encuentre disuelto ^{226}Ra en la propia agua.
- b) por retroceso del átomo de ^{222}Rn procedente de la desintegración del ^{226}Ra cuando se encuentra en el límite de la interfase sólido-líquido.

Una vez que el átomo de ^{222}Rn es incorporado al agua de los poros y grietas, su movimiento es por difusión y por arrastre con la misma, siendo en general, la difusión el mecanismo dominante en canales intergranulares y pequeños poros frente al transporte por arrastre con el agua que domina en poros de mayor tamaño [TAN78].

La solubilidad de un gas, según la ley de Henry, además de la naturaleza del propio soluto y del disolvente, depende de la temperatura y de la presión, y consecuentemente de la presión parcial que el gas ejerce sobre el líquido. Existe otro parámetro que permite estudiar la solubilidad del ^{222}Rn en agua, conocido como coeficiente de Ostwald, que establece la relación entre su concentración en agua y su concentración en aire, tal como indica la **Eq.4**:

$$K_{OSTWALD} = \frac{C_{Rn,agua}}{C_{Rn,aire}} \quad (\text{Eq.4})$$

El $K_{ostwald}$ se define como el cociente entre el ^{222}Rn existente en el agua y el ^{222}Rn presente en el aire en un sistema cerrado y después de un cierto tiempo, donde esta relación depende únicamente de la temperatura del agua. Para una presión de 1 atm y un rango de temperaturas entre 0 y 40°C, el coeficiente de Ostwald puede aproximarse a la **Eq.5** donde T es la temperatura del agua expresada en grados Celsius [SAR07].

$$K_{OSTWALD} = 0.425 \cdot e^{-0.05T} + 0.1 \quad (\text{Eq.5})$$

En la **Fig.2** se puede observar la evolución que experimenta el coeficiente con la temperatura, de forma que es fácilmente observable como a medida que la temperatura aumenta, el coeficiente disminuye y consecuentemente la solubilidad del ^{222}Rn en agua también disminuye.

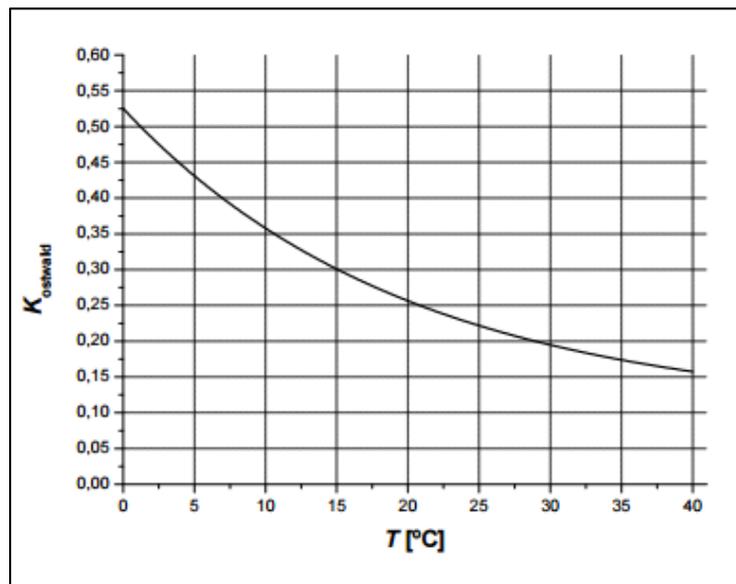


Fig.2: Evolución del $K_{OSTWALD}$ con la temperatura a 1 atm de presión [SAR07].

Un método específico para la determinación de ^{222}Rn en agua empleando este coeficiente, utiliza las siguientes expresiones [SAR07]:

$$A_w = A_{w1} + A_a \quad (\text{Eq.6})$$

Donde:

- i) A_w es la actividad de ^{222}Rn en la muestra de agua.
- ii) A_{w1} es la actividad de ^{222}Rn en el agua después de un proceso de desorción (burbujeo durante un tiempo determinado).
- iii) A_a es la actividad de ^{222}Rn en el aire después del burbujeo.

- iv) C_w es la concentración de radón en agua.
- v) C_{w1} es la concentración de radón en el agua sometida a desorción.
- vi) C_a es la concentración de radón en el aire después de la desorción.
- vii) V_w es el volumen de agua.
- viii) V_a es el volumen de aire.

Como la concentración (C) se define como la relación entre actividad (A) y volumen (V), se puede indicar que la actividad es volumen por concentración ($A=V \cdot C$), de forma que la **Eq.6** queda de la forma:

$$C_w \cdot V_w = C_{w1} \cdot V_w + C_a \cdot V_a \quad (\text{Eq.7})$$

Sustituyendo en la **Eq.7** el término C_{w1} por la **Eq.4** del $K_{OSTWALD}$ resulta la **Eq.8**:

$$C_w \cdot V_w = K_{OSTWALD} \cdot C_a \cdot V_w + C_a \cdot V_a \quad (\text{Eq.8})$$

Finalmente, se llega a la **Eq.9** para el cálculo de la actividad de ^{222}Rn en agua utilizando el coeficiente de Ostwald:

$$C_w = \frac{(C_a \cdot (K_{OSTWALD} \cdot V_w + V_a))}{V_w} \quad (\text{Eq.9})$$

La concentración de ^{222}Rn resulta muy variable en función del origen de las aguas. Cuando se trata de aguas superficiales el contenido en ^{222}Rn suele presentar valores muy bajos, normalmente inferiores a $2 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$, debido fundamentalmente a la aireación que experimentan estas aguas y que provoca su desorción. En cambio, cuando se trata de aguas subterráneas el contenido de ^{222}Rn suele ser bastante superior a las superficiales, llegando a valores que pueden superar los $10000 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ e incluso los $50000 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ cuando el agua pasa por rocas o circula a través de fracturas que contienen elevadas concentraciones de ^{226}Ra [CSN01].

Algunos estudios consideran que cuando estas aguas subterráneas ricas en ^{222}Rn llegan a las viviendas, y son usadas para tareas domésticas como duchas, lavados, cocina... estiman que la existencia de una concentración de $370 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ en agua puede suponer una contribución al aire de la casa de aproximadamente $37 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ en función del volumen de la casa y de la tasa de aireación [KIT96].

1.4.4 Riesgos del radón

La peligrosidad del ^{222}Rn , emisor de partículas alfa (5590.3 keV), radica en sus dos descendientes emisores alfa sólidos de vida corta: el ^{218}Po (6002.55 keV; 3.11 min) y el ^{214}Po (7686.90 keV; 163.69 μs) [GAL04;ICR14] que pueden vincularse a las partículas de 0.1 micras en suspensión del aire, e incorporarse por inhalación al organismo, fijándose en las distintas partes del tracto respiratorio, especialmente en la zona pulmonar donde depositan su energía produciendo daños, en algunos casos, irreparables a nivel celular así como alteración del ADN.

Existe una estimación de la dosis efectiva anual para los isótopos de vida corta del ^{222}Rn en exteriores de $70 \mu\text{Sv/año}$ frente a los $1.000 \mu\text{Sv/año}$ que se estiman para recintos cerrados [SUA97], pero estos valores debieran actualizarse con el nuevo factor propuesto de 12 mSv/WLM [ICR15]. Consecuentemente, la contribución por exposición a ^{222}Rn y descendientes puede alcanzar una dosis efectiva media estimada entorno al 50% de la dosis efectiva total [BEL95, UNS06], estimación resultante de los numerosos estudios realizados a escala mundial con distintos tipos de suelos, materiales de construcción y características constructivas. Sin embargo, se ha prestado menor atención a la exposición debido a su ingesta por presencia en el agua de consumo [COT90], y más al riesgo adicional asociado a su baja capacidad de transferencia del agua al aire, con un coeficiente estimado de 10^{-4} [KIT96].

La Organización Mundial de la Salud (World Health Organization), a través de su documento *WHO Handbook on indoor radon*, fija al ^{222}Rn como el responsable entre el 3 y el 14% de las muertes por cáncer de pulmón, constituyendo junto con sus descendientes la principal fuente de radiación ionizante para la población [WHO09;

[IAE11]. Por último, el ^{222}Rn figura entre una de las diez medidas a considerar para la prevención del cáncer [EUR14].

1.4.5 Legislación europea y nacional sobre radón en agua

En 1998, la Comunidad Europea emitió la directiva 98/83/CE [DIR98] sobre la calidad del agua destinada al consumo humano que trataba sobre aspectos microbiológicos, químicos y radioactivos. Su trasposición a nuestra legislación originó el RD 140/2003 [BOE03] que estableció valores para los índices alfa total ($0.1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$), beta total sin ^{40}K ($1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) y la actividad de tritio ($100 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$).

Los riesgos asociados a la presencia de ^{222}Rn en agua (riesgos por ingestión como el cáncer de estómago y riesgos por inhalación como el cáncer de pulmón consecuencia de su respiración tras su desorción [COT90]) han originado la necesidad de cambios importantes en la legislación, pasando de la inexistente mención al ^{222}Rn en el recientemente derogado RD 140/2003 donde se establecían los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano, al novedoso RD 314/2016 [BOE16] resultado de la trasposición de la Directiva 2013/51/Euratom del 22 de octubre del 2013 [DIR13] donde se fija por primera vez a nivel europeo un valor paramétrico para la presencia de ^{222}Rn en agua de consumo entre $100 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ y $1000 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.

El RD 314/2016 del 29 de julio, surge por imperativo europeo al estar obligado el gobierno español a trasponer en el plazo de 3 años la Directiva Europea 2013/51/Euratom. Este RD modifica además del RD 140/2003 del 7 febrero, al RD 1798/2010 del 30 de diciembre que regula la explotación y comercialización de aguas minerales naturales y aguas de manantial envasadas para consumo humano y al RD 1799/2010 del 30 de diciembre que regula el proceso de elaboración y comercialización de aguas preparadas envasadas para el consumo humano.

La novedad de gran relevancia, es la incorporación del ^{222}Rn en su anexo X que trata sobre el control de sustancias radiactivas en aguas de consumo humano en su apartado 2 junto con los otros dos parámetros (Tritio y Dosis indicativa) ya existentes en el anterior RD como puede observarse en la **Fig.3**.

Parámetro	Valor paramétrico	Unidad	Notas
Radón.....	500	Bq/l	1
Tritio.....	100	Bq/l	2
Dosis indicativa (DI) ..	0,10	mSv	–

Notas:

(1) a) Siempre que sea posible y sin perjuicio del suministro del agua, las actuaciones de los gestores estarán encaminadas a optimizar la protección de la población cuando los niveles de radón estén por debajo de 500 Bq/l y por encima de 100 Bq/l.

Fig.3: Tabla sobre concentración de Rn en el RD 314/2016.

Cabe destacar del resto del RD, en su apartado 4 sobre criterios para el control de las sustancias radiactivas, la diferenciación que hace en el sub-apartado 2 sobre si el origen de las aguas de consumo es subterráneo o superficial : *“Se realizarán los controles de exposición al radón con la frecuencia establecida en el apartado 3 de este anexo siempre que el origen del agua destinada a la producción de agua de consumo humano sea subterráneo de manera total o parcial y la caracterización de la zona de abastecimiento indique que sea razonable pensar que el valor correspondiente al radón pueda superar 500 Bq/l o bien cuando la masa de agua subterránea de procedencia no esté aún caracterizada “* [BOE16].

Resulta necesario definir el término Dosis Indicativa (DI) que aparece en la **Fig.3** (0.1 mSv/año) por el que se entiende la dosis efectiva comprometida por un año de ingesta debida a todos los radionúclidos cuya presencia se haya detectado en un abastecimiento de agua destinada al consumo humano, ya se sea de origen natural o artificial, excluidos el tritio, potasio 40, el radón y los productos de desintegración del radón de vida corta.

CAPÍTULO

2 Antecedentes del radón como trazador

2.1 Introducción

2.1.1 Acuíferos sobre rocas ígneas

2.1.2 Acuíferos sobre rocas sedimentarias

2.1.3 Acuíferos sobre rocas metamórficas

2.2 Descargas en aguas marinas

2.3 Descargas en aguas superficiales

2.4 Recarga de acuíferos

2.1 Introducción

Las propiedades físicas y químicas que presenta el ^{222}Rn , así como su comportamiento cuando se encuentra en aguas subterráneas permiten su utilización como trazador de origen natural en acuíferos y aguas subterráneas [SCH06].

Su utilización como trazador en aguas de infiltración (libres de radón) que alcanzan acuíferos ricos en ^{222}Rn , se basa en la concentración de equilibrio por decaimiento que sigue una función de tiempo marcada por su $T_{1/2}$ (3.8235 días), alcanzándose este equilibrio en 5 periodos (aproximadamente 20 días) pero también se utiliza como trazador en la detección de descargas de aguas subterráneas a cuerpos de agua superficial, basándose en que la actividad de ^{222}Rn en aguas subterráneas suele ser de 2 a 4 órdenes de magnitud superior a la que presentan las aguas superficiales [BUR10].

Junto a la ventaja que es un componente habitual de las aguas subterráneas, existen otras 5 características que hacen que el ^{222}Rn sea un trazador acuoso ideal [SCH06] frente a los habituales trazadores salinos y colorantes fluorescentes:

- i) la posibilidad de una contaminación de ^{222}Rn de origen antropogénico en aguas subterráneas puede quedar descartada.
- ii) la concentración de ^{222}Rn en aguas subterráneas no se ve influenciada por cambios en las condiciones pH/ E_h (E_h =potencial redox).
- iii) la concentración de ^{222}Rn en aguas superficiales no se ve afectada por la descomposición fotolítica.
- iv) gracias a su virtual comportamiento inerte, su retraso debido a la interacción física/química con la matriz del acuífero o por la floculación/precipitación es inexistente.
- v) en contraste con muchos trazadores salinos, el ^{222}Rn puede ser detectado con bastante precisión y selectividad a concentraciones muy bajas, gracias a la partícula alfa que emite a 5489.7 keV [GAL04].

Cuando se habla de aguas subterráneas es importante conocer el concepto de acuífero. Se trata de una formación geológica con gran capacidad de almacenamiento, con elevada porosidad, y con una gran facilidad de desplazamiento o transmisión del agua a su través. Pero existen otras formas de comportamiento del terreno frente al agua subterránea que deben conocerse para diferenciarse del acuífero [LAS15]:

- a) Acuícludo: formación geológica capaz de almacenar agua en su interior, incluso hasta alcanzar su saturación, pero no la transmite. Generalmente son depósitos subterráneos de arcilla.

- b) Acuíardo: formación geológica semipermeable, que almacena gran cantidad de agua pero la transmite muy lentamente, por lo que no son aptos para el emplazamiento de captaciones de aguas subterráneas, sin embargo bajo condiciones especiales permiten una recarga vertical de otros acuíferos.

- c) Acuífugo: formación geológica subterránea que se caracteriza por ser impermeable, por lo tanto, es incapaz de absorber o transmitir agua.

La revisión bibliográfica realizada sobre la utilización de ^{222}Rn como trazador ha determinado que su uso se ha centrado mayoritariamente en el estudio de la descarga de acuíferos, y en menor medida en su recarga [HOE89; HAM98; SAV11; SAI16] a través de aguas subterráneas ricas en radón y/o a través de aguas de infiltración con escasa presencia de radón en las mismas, pudiendo clasificarse básicamente en, si son procesos de descarga o recarga, y estos primeros en función del destino de sus aguas:

- a. Descarga
 - i) Aguas Marinas.
 - ii) Aguas Superficiales.

- b. Recarga

En cualquiera de las dos opciones resulta necesario conocer desde el punto de vista geológico los tres grandes tipos de roca que forman nuestra corteza terrestre para entender los comportamientos respecto al contenido en ^{222}Rn que pueden presentar los acuíferos [CIU17].

2.1.1 Acuíferos sobre rocas ígneas

Este tipo de rocas representan más del 90% del volumen de la corteza terrestre. Son rocas que se originan por el enfriamiento de una masa líquida de composición silicatada que procede del interior de la Tierra. Esta masa fundida se encuentra a altas temperaturas, y en su ascensión hacia la superficie terrestre se va enfriando y solidificando. Cuando esta solidificación tiene lugar en:

- i) zonas cercanas a la superficie, se originan las rocas plutónicas o intrusivas, que al estar sometidas a elevadas presiones sus minerales crecen muy unidos formando rocas densas no porosas. El granito es el ejemplo más característico.
- ii) en la superficie, da lugar a las rocas volcánicas o extrusivas. El resultado son rocas constituidas a temperatura ambiente y bajas presiones por una masa de cristales de pequeño tamaño o bien materia amorfa sin cristalizar (vidrio). El ejemplo más característico es el basalto.

Existe otra clasificación para este tipo de rocas de gran interés para nuestro estudio que viene determinada por la abundancia en óxido de silicio (SiO_2), ya que, normalmente, existe un aumento de radiactividad al aumentar el contenido en sílice [COP63]. Esta clasificación divide el tipo de rocas ígneas en:

- a) rocas ácidas, con un contenido $> 65\%$ en SiO_2 . La presencia de uranio en estas rocas es del orden de 6 ppm. En este tipo se encuentra clasificado el granito, de 3 a 4 ppm de uranio [COP63].
- b) rocas intermedias, con un contenido en SiO_2 entre 52-65 %. La presencia de uranio se estima entre 1-2 ppm.
- c) rocas básicas, con un contenido en SiO_2 entre 45-52 %.
- d) rocas ultrabásicas, con un contenido en $\text{SiO}_2 < 45\%$.

Las zonas de España donde se pueden localizar fundamentalmente este tipo de rocas, son las zonas graníticas de Galicia y del oeste de España junto con el Sistema Central, constituidos fundamentalmente por rocas plutónicas ácidas, con valores de uranio superiores a 2.88 ppm [FOR16] que se verán reflejados en la presencia de radón en las aguas de los acuíferos formados sobre este tipo de rocas.

2.1.2 Acuíferos sobre rocas sedimentarias

Son rocas originadas por el transporte y la deposición de materiales orgánicos/inorgánicos arrastrados por la acción del viento, el agua, el hielo o depositados químicamente a partir de un fluido acuoso. Normalmente, salvo casos excepcionales, este tipo de rocas presentan poca actividad radiactiva. Se distinguen dos tipos de rocas sedimentarias:

- a) Detríticas: son las formadas a partir de la sedimentación de fragmentos de otras rocas después de una fase de transporte. Las más características son las arcillas y las areniscas.

- b) No detríticas o químicas: son formadas a partir de la precipitación de determinados compuestos químicos en soluciones acuosas o bien por la acumulación de sustancias de origen orgánico. Ejemplo característicos:
 - i) la roca caliza formada en su mayor parte por la precipitación de carbonato cálcico o por la acumulación de fragmentos esqueléticos (corales, gasterópodos, ostrácodos, etc.).

 - ii) los yesos generados por la evaporación de aguas en medios marinos y lagunares, y por la precipitación de sulfato cálcico. Este tipo de rocas son conocidas como evaporíticas.

Calizas y arcillas se encuentran localizadas fundamentalmente en el área Pirenaica, al sur del Valle del Ebro, la costa Mediterránea y el área al sur del Guadalquivir [GAR13] mientras que areniscas y yesos principalmente se focalizan en el área de Castilla y León, Castilla la Mancha y el Valle del Ebro. Los acuíferos formados sobre este tipo de rocas no debieran contener radón en sus aguas.

2.1.3 Acuíferos sobre rocas metamórficas

Se generan a partir de otras rocas ya existentes que sufren reajustes por procesos geológicos que implican importantes aumentos en la temperatura y en la presión. Este reajuste ocasiona cambios en sus minerales y composición química de forma que la roca original (sedimentaria, ígnea o metamórfica) se transforma en un nuevo tipo llamado roca metamórfica. El mármol y la pizarra son ejemplos característicos de este tipo de rocas.

Los principales yacimientos en España de este tipo de roca son las pizarras uraníferas de Salamanca y Badajoz, junto con los depósitos epigenéticos de Salamanca (Saelices, Villar de la Yegua) [MEN13].

La presencia de radón en las aguas de los acuíferos formados sobre este tipo de rocas dependerá del tipo de roca original sobre el que se ha formado esta nueva roca metamórfica (sedimentaria, ígnea o metamórfica).

2.2 Descargas en aguas marinas

Los procesos de descarga de acuíferos en zonas submarinas, conocidos como Submarine Groundwater Discharge (SGD), resultan de gran interés al actuar como vehículos de transporte para nutrientes y contaminantes disueltos [SLO04] que acaban en el mar, además de originar una pérdida significativa de volúmenes de agua dulce. La necesidad de poder detectar y cuantificar estos procesos SGD ha llevado a la utilización de distintos parámetros [SCH14]:

- i) la temperatura y la conductividad eléctrica.
- ii) isótopos estables del agua como el ^{18}O y el ^2H (deuterio).
- iii) gases como el metano (CH_4) y el CO_2 .
- iv) radionúclidos naturales como el radio y el radón.

Habitualmente, resulta necesario evaluar la idoneidad de los trazadores mencionados para cada caso en concreto a investigar:

- a) la temperatura va a depender de su gradiente existente entre el agua del mar y el acuífero. Se ha utilizado en algunos estudios [JHO08], pero cuando esta diferencia es muy pequeña, existen dificultades para poder determinar si estos pequeños gradientes pueden deberse a las fluctuaciones diarias por las mareas o a las fluctuaciones generadas por la SGD [SCH14].
- b) la conductividad eléctrica, normalmente es considerada como un trazador más adecuado para estudios de SGD que la temperatura. Los gradientes de salinidad que se generan entre el agua del mar y el agua dulce son más notables, pero se encuentran influenciados si la descarga del acuífero tiene lugar en la costa o en zonas más alejadas a la misma [SCH14].
- c) los isótopos estables de ^{18}O y ^2H suelen dar resultados buenos pero su elevado consumo de recursos económicos y técnicos suelen convertirlos en opciones

desaconsejables. Como ocurre con la conductividad eléctrica, pueden verse influenciados de forma muy notable por las mareas dependiendo si la descarga es cerca de la costa o en zonas más alejadas [SCH14].

- d) el gas metano resulta un buen trazador al presentar las aguas subterráneas concentraciones muy superiores a las que existen en las aguas marinas [CAB96a, COR99, BUG96].
- e) la presencia de radio, depende fundamentalmente del tipo de roca sobre el que se ha formado el acuífero. El radio a través de sus isótopos ^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{224}Ra y ^{223}Ra es ampliamente utilizado como trazador ambiental en SGD [CHA08] porque con los cuatro isótopos se cubre un amplio rango debido a su alternancia de $T_{1/2}$ (^{226}Ra : $T_{1/2}=1600$ años, ^{228}Ra : $T_{1/2}=5.75$ años, ^{223}Ra : $T_{1/2}=11.43$ días y ^{224}Ra : $T_{1/2}=3.63$ días) [NUC17]. Algunos estudios han obtenido buenos resultados en su empleo como trazador en acuíferos sobre rocas calizas, generando los conocidos como sistemas kársticos [JHO12, CHR08].
- f) la utilización de ^{222}Rn como trazador de SGD en un amplio rango de ambientes ha sido registrada por diversos autores [CAB96a; CAB96b; COR99]. La diferencia de concentración del mismo existente entre aguas subterráneas y aguas superficiales, frecuentemente 1000 veces superior [CHA08], su comportamiento inerte, y su corta vida hacen que se convierta en un excelente trazador para identificar descargas de aguas significativas.

En las primeras investigaciones de SGD empleando ^{222}Rn como trazador, se utilizaron técnicas de análisis para medir su emanación lo que implicaba especial dificultad en la toma de muestras para su posterior desgasificación y medida en el laboratorio [MAT88]. En 2001 [BUR01] se realizó un estudio sobre la descarga de aguas subterráneas al mar con la gran novedad de introducir medidas de ^{222}Rn en continuo, a través de un equipo de medida de ^{222}Rn en aire denominado RAD7 con un sistema específico para ^{222}Rn en agua que generaba la desorción del ^{222}Rn .

Los estudios encontrados y mencionados a lo largo de este apartado sobre utilización de ^{222}Rn como trazador para la investigación de SGD mencionan principalmente la roca caliza y la dolomita (ambas rocas sedimentarias) como la base sobre los que están formados estos acuíferos o aguas subterráneas. El ^{222}Rn resulta ser un atractivo trazador para determinar los tiempos de residencia

en estos sistemas kársticos porque su pequeño periodo de semidesintegración (3.82 días) se corresponde a la escala de tiempo adecuada para el flujo rápido que tiene lugar [LUD11]. El transporte de sus átomos en estos sistemas se debe principalmente al movimiento del agua. Como norma, los átomos de ^{222}Rn no llegan a viajar más allá de varias decenas de metros desde su lugar de emisión aunque dependiendo del flujo del agua estas distancias pueden llegar a alcanzar entre 100-200 m [PRZ07]. Su pequeño $T_{1/2}$ provoca que después de poco más de 38 días, lo que equivale a 10 veces su $T_{1/2}$, menos del 0.098% de los átomos iniciales disueltos en el agua permanezcan.

2.3 Descargas en aguas superficiales

Los primeros estudios que usaron ^{222}Rn para investigar el flujo de descargas entre aguas subterráneas y superficiales fueron los realizados por Rogers en 1958 [ROG58] sobre los flujos de aguas superficiales que terminan en el Salt Lake. Las medidas de las muestras recogidas a pie de campo se realizaron en el laboratorio con la utilización de una cámara de ionización. Las nuevas tecnologías han permitido mediciones rápidas in situ y económicas [BUR10], pero las más habituales son el empleo de células de Lucas, cámaras de ionización, detectores de estado sólido y espectrometría gamma [RUB15].

Las descargas de aguas subterráneas a aguas superficiales tienen un papel importante en la hidrología y la ecología de ambos sistemas. Por tanto, resulta necesario identificar las áreas de descarga y cuantificarlas [LUC13]. El mayor problema en estos estudios radica en la cuantificación de la descarga, de ahí que se recurran a trazadores ambientales como el ^{222}Rn [KEL90, COO06, MUL07] con una actividad de 2 a 4 órdenes de magnitud mayor en las aguas subterráneas que en las aguas superficiales [BUR10], junto con los avances tecnológicos comentados sobre el estudio de SGD que permiten la medición en continuo de ^{222}Rn en agua [BUR01].

La dificultad en estos estudios se encuentra, en que si bien en el punto de descarga existe un incremento inmediato de la concentración de ^{222}Rn , aguas abajo su concentración disminuye rápidamente por su rápida transferencia al aire y en menor

grado por su desintegración radiactiva. Por ello, para la determinación de los flujos de descarga también se emplean otros trazadores que acompañan al ^{222}Rn [GEN90]:

- a) un trazador conservador (NaCl) y uno gaseoso (propano, C_3H_8).
- b) Deuterio (^2H) y ^{18}O , que resultan excelentes trazadores para movimientos de agua fundamentalmente porque se encuentran presentes en las moléculas de agua, permitiendo la diferenciación entre aguas viejas con altos tiempos de residencia y aguas recientes.
- c) ^3H y Si , con el inconveniente que la cantidad de Si en aguas de baja fuerza iónica puede variar sustancialmente al transcurrir por un suelo.
- d) Calcio, se emplea en ocasiones para determinar si existen mezclas de distintas corrientes subterráneas, al tener las aguas en contacto con rocas Dolomitas (típicas de un paisaje kárstico junto con las calizas) contenidos muy elevados [GEN93].
- e) CFCs usados junto con trazadores iónicos (conductividad, Mg^{+2} , Cl^-) para estimar el flujo de agua subterránea a un río tropical además de tiempos de residencia [COO03].
- f) Hexafluoruro de azufre (SF_6), se ha usado para determinar la velocidad de transferencia en la descarga de aguas superficiales a un río en Australia [COO06].

2.4 Recarga de acuíferos

La primera mención existente sobre medidas de concentración de ^{222}Rn en acuíferos es de Ramsey en 1915 [HOE89] en manantiales superficiales donde muestra que las concentraciones se incrementan durante los periodos de descarga. Esta situación es afirmada por otros autores [EIS95] que además indican que durante los procesos de recarga el agua de lluvia diluye el contenido del acuífero, y puede en menor medida aportar ^{222}Rn dependiendo de la composición del terreno por donde tiene lugar el proceso de filtración.

Resulta importante distinguir si el acuífero se encuentra saturado o insaturado, porque su comportamiento con respecto al ^{222}Rn será distinto [HAM98]. En acuíferos insaturados, el flujo de ^{222}Rn generado se distribuye entre la fase líquida y la fase gaseosa, mientras que en el saturado todo el ^{222}Rn se concentra únicamente en la fase

acuosa. Los estudios determinan que la concentración de ^{222}Rn en las aguas de superficie de las zonas saturadas disminuyen como consecuencia del aporte de aguas superiores de zonas insaturadas con menores concentraciones al tener el ^{222}Rn vía de escape en el aire.

Los acuíferos en sistemas kársticos son una parte muy importante de las fuentes de agua dulce de que se disponen, pero se consideran muy vulnerables debido a los numerosos contaminantes que por infiltración de aguas superficiales (ríos, lluvias, riegos...) pueden alcanzarles [GUN86]. En consecuencia, resulta necesario cuantificar estos flujos además de caracterizarlos con sus velocidades y posibles orígenes.

En el estudio de recargas de acuíferos tal como se había comentado en los apartados anteriores de descargas a aguas marinas y aguas superficiales se utilizan distintos parámetros como pueden ser:

- a) el ^{222}Rn , que se emplea para estimar los tiempos de residencia del agua, y poder determinar la velocidad de los flujos [HOE89]. Otros estudios más recientes [SAI16] lo han utilizado además para determinar las concentraciones de origen de las aguas de carga, determinando de esta forma si la recarga se produce por aguas subterráneas o por aguas superficiales.
- b) $\delta^{18}\text{O}$, utilizado para investigar la mezcla de aguas, permitiendo diferenciar el origen del agua superficial [GUI02] cuando convergen distintas fuentes.
- c) algunos estudios utilizan varios parámetros al mismo tiempo para caracterizar el agua en los procesos de recarga: ácido tánico, deuterio (^2H), sílice, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ [KAT98].
- d) el CO_2 ha sido empleado también en algunos estudios con buenos resultados. Se produce principalmente por la actividad biológica del suelo, por lo que sus concentraciones disminuyen durante la filtración hacia aguas subterráneas por procesos de desgasificación principalmente o por su reacción con minerales carbonatados cuando la filtración tiene lugar en sistemas kársticos [LUD11; VES04].

CAPÍTULO

3 Técnicas e instrumentos de medida

3.1 Medida de ^{222}Rn en aire

3.1.1 Radon scout

3.1.2 RTM 2100

3.1.3 RAD7 radon detector

3.1.4 ATMOS 12 DPX

3.2 Medida de ^{222}Rn en agua

3.2.1 Triathler 425-034

3.2.2 Espectrómetro gamma HPGe(Li)

En este **Capítulo** se realiza una descripción técnica de los instrumentos de medida empleados en este estudio para la medida de ^{222}Rn en aire y en agua, con especial detalle en cuanto al cálculo de actividad, incertidumbre y límite de detección para los dos equipos de medida de ^{222}Rn en agua: Triathler y HPGe(Li).

Medida de ^{222}Rn en aire:

- i) Radon scout
- ii) RTM 2100
- iii) RAD7 radon detector
- iv) ATMOS 12 DPX

Medida de ^{222}Rn en agua:

- v) Triathler 425-034
- vi) Espectrómetro gamma HPGe(Li)

3.1 Medida de ^{222}Rn en aire

3.1.1 Radon scout

Se trata de un dispositivo para la medida de radón en aire (**Fig.4**) de la empresa SARAD [SCO05] que determina la concentración de ^{222}Rn , la humedad relativa, la temperatura del aire y la presión atmosférica para cada instante determinado.



Fig.4: Equipo Radon scout para medida de ^{222}Rn en aire.

Resulta ser un equipo de pequeñas dimensiones 17.5 x 5.5 x 13.5 cm (largo x alto x ancho) que le transfieren una gran movilidad, facilitando su transporte y colocación en cualquier zona de estudio. Su memoria le permite almacenar 672 datos, con un tiempo de integración a escoger entre 1 y 3 horas. Según recomendaciones del fabricante, para concentraciones inferiores a $200 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ debe emplearse el intervalo de 3 horas porque en caso contrario el error estadístico llega a ser del orden del 20%. En este estudio la toma de datos fue cada hora, puesto que las concentraciones esperadas eran superiores a este valor y por lo tanto el error inferior al 10%.

Este equipo al carecer de bomba de aire para atraer el aire mide el radón por difusión, para lo que consta de una cámara de medida equipada con un detector de silicio sometido a un alto voltaje, con corrección integrada debida a la humedad ambiental, que detecta en una única ventana de energía la existencia de ^{218}Po .

Los principales datos técnicos del equipo son los que pueden verse en la **Tab.3**:

Tab.3: Datos técnicos del dispositivo Radon scout.

Sensibilidad	1.8 cpm/kBq/m ³
Rango de Medida	0 a 2 MBq/m ³
Error	±5%
Condiciones Ambientales	-10 a 40°C, 0 a 100% Hr sin condensación
Sensor de Temperatura	-20 a 80°C
Sensor de Humedad	0 a 100% Hr
Sensor de Presión	800 a 1200 mbar
Peso	800g incluido las baterías

3.1.2 RTM 2100

El RTM 2100 [RTM03] es un equipo diseñado para medir de forma continua la concentración en aire de ^{222}Rn y ^{220}Rn , así como la temperatura ambiente, la humedad relativa, la presión atmosférica y el flujo de aire que entra en el dispositivo. En su interior consta de una bomba que se encarga de conducir continuamente el aire desde el exterior hacia la cámara de medida, pasando previamente por dos filtros que se

encargan de retener todos los descendientes del ^{222}Rn y del ^{220}Rn , logrando que al interior de la cámara únicamente lleguen ^{222}Rn y ^{220}Rn . En la **Fig.5** puede apreciarse el equipo RTM 2100 empleado para este estudio.



Fig.5: Equipo RTM 2100.

El detector semiconductor de silicio en contacto con la cámara se encuentra sometido a una elevada diferencia de potencial, generándose un campo electrostático entre las paredes de la cámara y la superficie del detector, como puede apreciarse en la **Fig.6**.

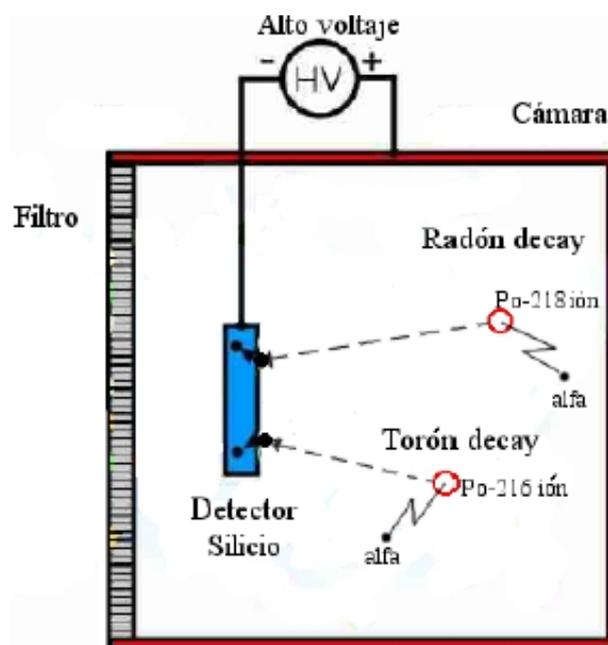


Fig.6: Esquema del funcionamiento de la cámara interna del RTM 2100 [RAB13].

Durante el proceso de desintegración radiactiva del ^{222}Rn y del ^{220}Rn , los radionúclidos que se forman, el ^{218}Po y el ^{216}Po , son ionizados de forma que influenciados por las fuerzas del campo electrostático acaban depositándose sobre la superficie del detector. Las desintegraciones α de estos descendientes de vida corta (3.10 min y 0.145 s) son registradas por el detector con una eficiencia del 50% (solo se contabilizan el 50% de las emisiones α existentes). Por tanto, la determinación de la concentración de ^{222}Rn y ^{220}Rn en aire se realiza a partir de los pulsos de ^{218}Po y ^{216}Po contados. Para lograr un aumento de la estadística en un factor 2, se puede incluir también que se contabilice el ^{214}Po (descendiente del ^{218}Po) con un $T_{1/2}=164.3 \mu\text{s}$ con el inconveniente que la respuesta del equipo es más lenta debido al mayor periodo de semidesintegración de los radionúclidos intermedios ($^{214}\text{Pb}=26.8 \text{ min}$ y $^{214}\text{Bi}=19.9 \text{ min}$).

Para la determinación de la eficiencia ($\text{cpm}/\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) se emplea la **Eq.10**, donde la eficiencia del detector (E) depende únicamente de la humedad absoluta (aH) debido a la descarga por moléculas de agua. Esta expresión tiene 3 parámetros variables (k_0 , k_1 y k_2) que son programadas en el equipo durante su proceso de calibración en fábrica:

$$E = f(aH) = k_2 + k_0 \cdot e^{-\frac{aH}{k_1}} \quad (\text{Eq.10})$$

Para separar las cuentas pertenecientes a los radionúclidos de interés ($^{218/216/214}\text{Po}$) frente al resto de descendientes, el detector está conectado a un espectroscopio con 4 ventanas de energía o regiones de interés (ROI's) asignadas como pueden verse en la **Fig.7**.

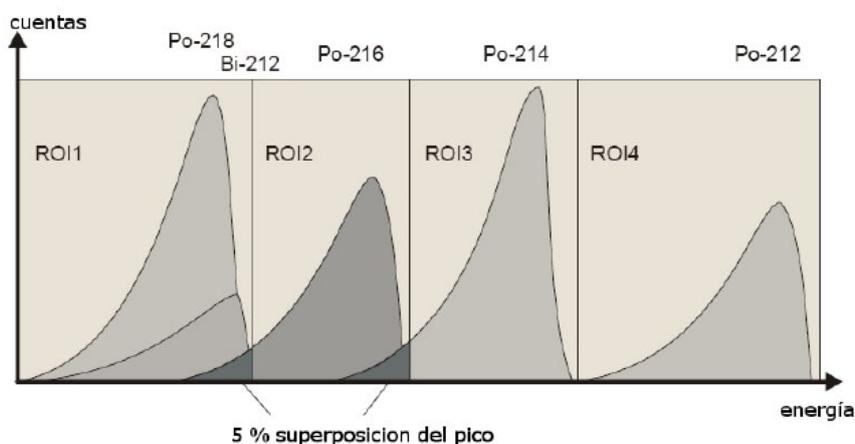


Fig.7: Espectro de las ventanas de energía empleadas por el RTM 2100 [RTM03].

Como se aprecia en la **Fig.7**, la parte izquierda de los picos de los espectros para cada ROI presentan una cola que se debe a la capa protectora del detector de silicio que origina una pérdida de energía en las partículas α antes de alcanzar la parte sensible. También se pueden ver pequeñas superposiciones entre las colas de alguno y los espectros del siguiente ROI, situación que pueden añadir cuentas que no pertenecen al propio ROI. Sin embargo, esta superposición de picos es constante para todos los canales, ya que sólo depende de la geometría del detector. Por tanto, se pueden calcular unos valores de corrección para el contaje de cada isótopo (^{218}Po , ^{216}Po y ^{214}Po) que se fijan durante el proceso de calibración.

El equipo presenta tres opciones de medida en función del rango de la concentración:

- i) Radon Fast.
- ii) Radon Slow.
- iii) Thoron.

La opción Slow es la recomendada cuando se pretenden medir bajas concentraciones de radón, mejorando la estadística al contabilizar las cuentas de ^{218}Po y las de ^{214}Po . Por el contrario, para la realización de medidas en continuo de elevada concentración, la opción recomendable es la empleada para este estudio, Radon Fast. Esta opción contabiliza únicamente las cuentas generadas por el ^{218}Po . El tiempo de integración seleccionado para las medidas ha sido de una hora, obteniéndose un valor de la concentración cada 60 minutos. La **Eq.11** es la empleada para calcular la concentración de ^{222}Rn :

$$C_{222\text{Rn}} = \frac{N}{E(aH) \cdot T} \quad (\text{Eq.11})$$

Donde:

- $C_{222\text{Rn}}$ es la concentración de ^{222}Rn en $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.
- N son las cuentas totales de $^{218/216/214}\text{Po}$ durante el tiempo de medida.
- T es el tiempo de medida en minutos.
- E es la eficiencia del detector, que depende de la humedad absoluta (aH).

Todo lo descrito sobre el RTM hasta el momento hace referencia a su utilización para medida de ^{222}Rn en aire, pero cuando su aplicación es la de medir ^{222}Rn en continuo en agua, resulta necesario acoplar un sistema que permite la transferencia del ^{222}Rn contenido en el agua al aire tal como se explicará a continuación y que puede visualizarse en la **Fig.8**.

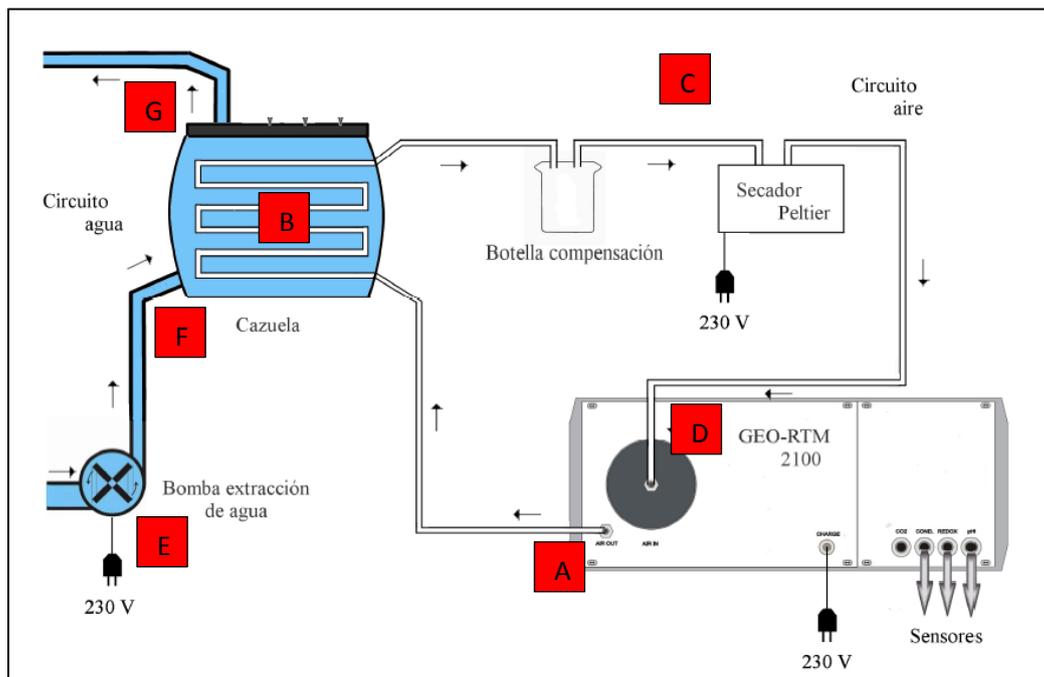


Fig.8: Esquema del dispositivo utilizado para medida en continuo de ^{222}Rn en agua por el RTM 2100 [SAI16].

Observando la **Fig.8**, se aprecia que el sistema se compone de 2 circuitos diferenciados. En color azul se marca el recorrido que sigue el agua a medir, mientras por el blanco circula el aire que sale y entra al RTM. Las distintas partes que componen ambos circuitos son las siguientes:

Circuito de Aire

- A) salida de aire marcada sobre el equipo con la denominación "OUT". Este flujo de aire se genera gracias a su bomba interna.

- B) recipiente con el agua que se quiere medir, en el que hay un tubo de silicona sumergido y repartido por todo su interior. Este tubo de silicona es impermeable al agua pero permite el paso del radón por difusión molecular, por lo que el radón disuelto en el agua pasa al circuito de aire dentro del tubo.
- C) botella de compensación y un secador Peltier para evitar la entrada de vapor de agua al detector. La función de la botella es la de condensar el posible vapor de agua que exista en el circuito de aire mientras el secador elimina el posible vapor que haya escapado a la botella.
- D) entrada del circuito de aire al RTM, marcado en el equipo como "IN".

Circuito de Agua

- E) bomba externa sumergida en el medio acuoso que se quiere medir, cuya función es la de enviar agua continuamente al recipiente B.
- F) entrada del circuito de agua al recipiente B.
- G) salida del circuito de agua del recipiente B, con destino a su medio acuoso de origen.

Una vez el aire del circuito llega al interior del RTM, se aplica de igual forma todo lo anteriormente expuesto para el funcionamiento del RTM.

3.1.3 RAD7 radon detector

Se trata de un equipo de espectrometría α para la medida en continuo de ^{222}Rn en aire que usa un detector sólido de silicio, material semiconductor sometido a una diferencia de potencial entre 2000-2500 voltios que convierte las partículas α que emiten el ^{222}Rn y sus descendientes (^{218}Po y ^{214}Po) en una señal eléctrica [RAD07]. En la **Fig.9** se puede ver el equipo RAD7, un equipo de dimensiones reducidas que es fácilmente transportable y puede colocarse a medir en cualquier lugar de interés lejos del propio laboratorio.



Fig.9: Imagen del equipo RAD7 radon detector.

Su electrónica determina la energía de cada partícula α que es detectada, de forma que distingue perfectamente qué isótopo la origina y por tanto permite diferenciar entre radón antiguo y radón nuevo, entre radón y torón, y lo que es señal de lo que es ruido. Otra ventaja que presenta este equipo, es su bajo fondo, lo que permite medir bajos niveles de ^{222}Rn en aire (entre 4 y 750000 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) según fabricante.

La técnica de funcionamiento de este equipo consiste en que presenta una cámara interior de 0.75 l recubierta con un conductor eléctrico donde se recoge la muestra de aire con la ayuda de una bomba interna con un caudal de $1\text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, y en cuyo centro se encuentra situado el detector de silicio. El circuito de alto voltaje del equipo carga el interior del conductor generando una diferencia de potencial con respecto al detector de 2000 a 2500 voltios, creándose un campo eléctrico alrededor del detector que es capaz de atraer a las partículas cargadas positivamente, ^{218}Po una vez el ^{222}Rn emite su partícula α y se transforma. De este modo se logra contabilizar con una probabilidad del 50% la emisión α que esos núcleos de ^{218}Po generan en su proceso de desintegración.

El espectro sobre el que trabaja el equipo, es una escala de energías α que va de 0 a 10 MeV, siendo de especial interés la ventana de 6 a 9 MeV (**Fig.10**) que es donde los descendientes del ^{222}Rn emiten. En la ventana A se reflejan las cuentas del ^{218}Po que emite a una energía de 6.00 MeV, y que es utilizado para contabilizar el ^{222}Rn que entra en la cámara. Mientras que en la ventana B se contabilizan las cuentas correspondientes al ^{214}Po , utilizadas para contabilizar el ^{222}Rn viejo (que lleva más tiempo en la cámara de muestreo) que emite a 7.69 MeV.

En el caso de tener intención de medir Torón (^{220}Rn), la ventana del espectro que interesa es la B, donde aparecería un pico a 6.906 MeV que corresponde al ^{216}Po producto directo de la desintegración α del Torón.

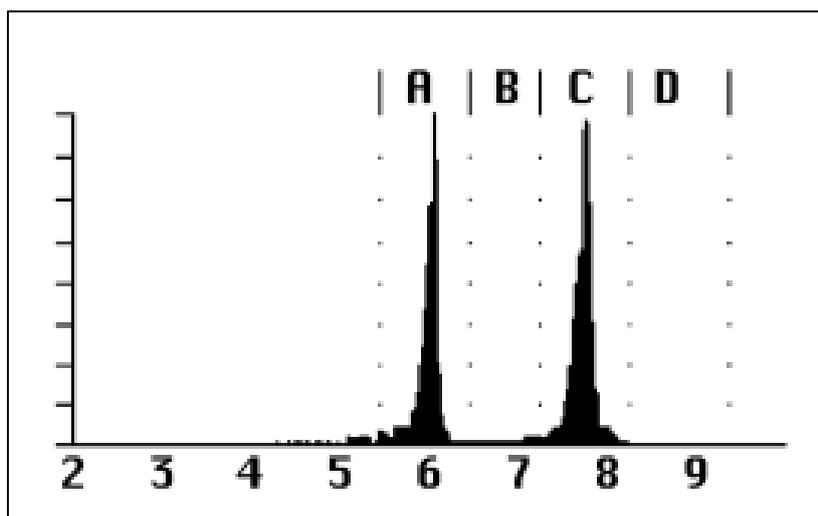


Fig.10: Espectro tras 3 horas de funcionamiento del equipo en condiciones constantes de ^{222}Rn [RAD07].

Una ventaja que presenta este equipo respecto a otros, es que la existencia de ^{210}Pb que es un radionúclido con un periodo de semidesintegración de 22.2 años muy habitual cuando se mide ^{222}Rn y que se encuentra en el interior de la cámara del equipo, no genera ningún tipo de interferencia al no aumentar el fondo. El ^{210}Pb es un emisor β que da lugar a ^{210}Bi otro emisor β que genera en su proceso de desintegración el ^{210}Po que sí es emisor α (5.407 MeV) generando cuentas que pueden interferir en la medida que realiza cualquier equipo. En este caso, no ocurre así, porque la ventana de conteo A no incluye la energía de emisión del ^{210}Po , y consecuentemente no se contabilizan sus emisiones.

3.1.4 ATMOS 12 DPX

Se trata de un equipo de mayores dimensiones a los presentados hasta el momento para la medida de ^{222}Rn en aire, 50 cm x 38.5 cm x 22 cm (largo x alto x ancho) con un peso de 14 kg, pensado para poder transportarlo y utilizarlo para medidas de interior lejos del laboratorio [ATM12]. Presenta en su interior una cámara de ionización con un volumen de 2.3 l, por cuyo interior fluye en continuo un caudal de aire de 1.0 l·min⁻¹ gracias a una bomba interna que bombea un flujo de aire de 1.4 l·min⁻¹.

Tal como puede apreciarse en la **Fig.11**, el equipo viene protegido dentro de un maletín para evitar daños en los previsibles golpes que sufre el equipo en su transporte y utilización.



Fig.11: Equipo ATMOS 12 DPX funcionando dentro de la cámara empleada para verificación de equipos de medida de ^{222}Rn en aire.

Se trata del equipo utilizado como referencia en el laboratorio LaRUC, acreditado por ENAC según norma de calidad de ensayos ISO/IEC 17025, para la verificación de la medida de ^{222}Rn en aire que realizan el resto de equipos que se utilizan habitualmente. Tal como puede verse en la **Fig.12**, dispone de muy pocos botones lo que simplifica su manejo además de una pantalla que permite ver resultados sin necesidad de conectar a un ordenador.

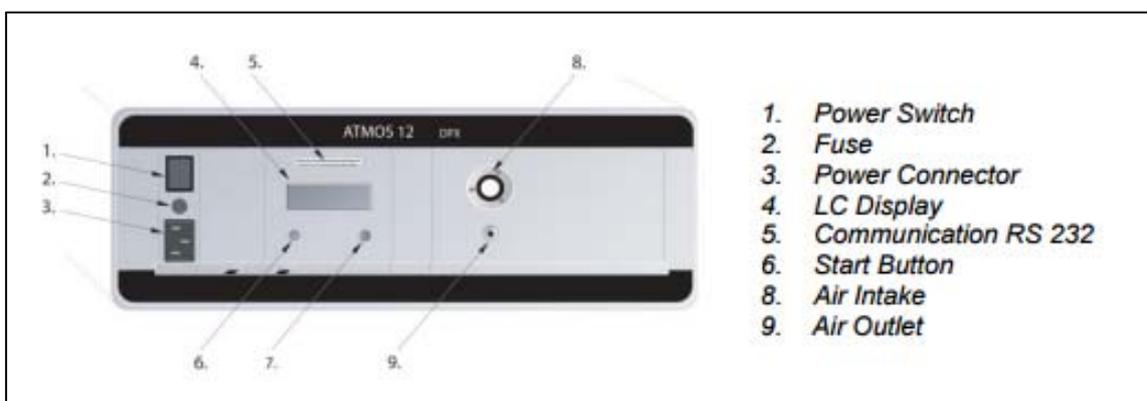


Fig.12: Panel de control del ATMOS 12 DPX [ATM12].

El equipo consta de las siguientes partes:

- i) una unidad de detección formada por una cámara de ionización sometida a una diferencia de potencial.
- ii) una bomba de aire interna con un filtro deshidratador ($1.4 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$).
- iii) electrónica para detectar los pulsos junto con un amplificador.
- iv) un ordenador con pantalla LC y un puerto RS-232.

En la pantalla LC que dispone el equipo, la información que se puede visualizar es la que aparece en la **Fig.13**:

- A) es el reloj que marca la fecha y hora, sólo funciona si el equipo está encendido.
- B) muestra resultado de ^{222}Rn en aire junto con su incertidumbre.
- C) las unidades en las que se expresan los resultados: Bq/m^3 .
- D) el lado derecho muestra el tiempo de integración, 10 min. Mientras el lado izquierdo muestra el tiempo transcurrido desde la última integración.

A) →	101222	15:05:25
B) →	130 ±100	
C) →	Bq/m ³	Radon gas
D) →	0:00:05	10 min

Fig.13: Información de la pantalla LC del ATMOS 12 DPX.

Para calcular la concentración de ^{222}Rn en el aire de la muestra que entra en la cámara de ionización del equipo se emplea la **Eq.12** aplicada a la **Fig.14** donde se representa el espectro. El eje (x) corresponde a los canales, mientras en el eje (y) se representan las cuentas, distinguiéndose las ventanas A, B y C:

- A es la ventana donde aparecen los picos del ^{222}Rn y del ^{218}Po .
- B es la ventana donde aparece el pico del ^{214}Po .
- C es la ventana que abarca todo el espectro.

$$R_n = \frac{(C_1 \cdot N_A - C_2 \cdot N_B)}{(1 - C_3 \cdot N_C)} \quad (\text{Eq.12})$$

Donde:

- C_1 es una constante de calibración para la ventana A en $\text{Bq} \cdot \text{cps}^{-1} \cdot \text{m}^{-3}$.
- C_2 es una constante de calibración para la ventana B en $\text{Bq} \cdot \text{cps}^{-1} \cdot \text{m}^{-3}$.
- C_3 es una constante de calibración para la ventana C en $\text{Bq} \cdot \text{cps}^{-1} \cdot \text{m}^{-3}$.
- N_A es la tasa en la ventana A en cps.
- N_B es la tasa en la ventana B en cps.
- N_C es la tasa en la ventana C en cps.

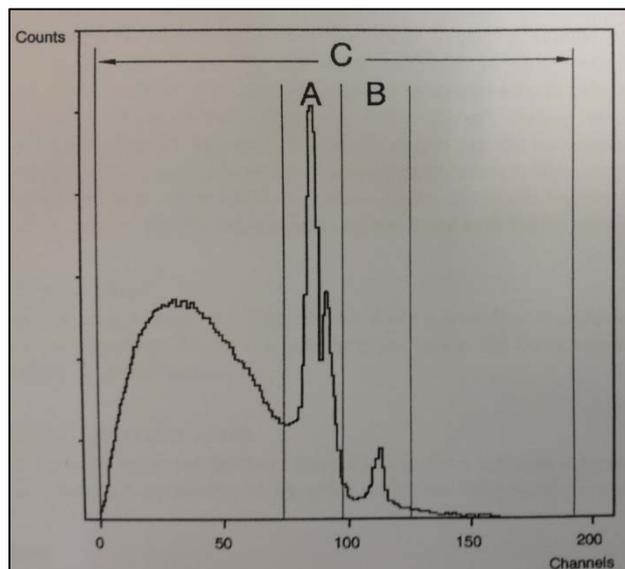


Fig.14: Espectro típico ATMOS 12 DPX con presencia de ^{222}Rn , ^{218}Po y ^{214}Po [ATM12].

3.2 Medida de ^{222}Rn en agua

3.2.1 Triathler 425-034

El Triathler 425-034 (**Fig.15**) es un equipo de centelleo líquido, Liquid Scintillation Counting (LSC), con separador integrado α/β de dimensiones reducidas (330 x 250 x 190 mm) que permite un resultado directo de la medida [TRI04]. El líquido de centelleo utilizado tiene por objetivo convertir las emisiones α/β del ^{226}Ra , ^{222}Rn y descendientes

en fotones que son detectados por el tubo fotomultiplicador [KIT94]. Este líquido es un hidrocarburo con dos anillos aromáticos conocido como disopropil naftaleno (DIN), usado en el método directo de medida de radón en agua.



Fig.15: Equipo LSC "Triathler 425-034"

Para los cálculos de actividad se emplea la **Eq.13**:

$$A = \frac{(G-B)}{(Ef \cdot 60 \cdot V)} \quad (\text{Eq.13})$$

Donde A es la actividad en $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$; G son las cuentas por minuto (cpm) que aparecen en la pantalla del equipo; B es el fondo en cpm que marca el equipo para una muestra preparada con agua destilada; Ef es la eficiencia del equipo para el ^{222}Rn , ^{218}Po y ^{214}Po ; V es el volumen de la muestra en litros empleándose el factor 60 en el denominador para transformar las cuentas por minutos en cuentas por segundo.

La eficiencia empleada cuando sólo existe ^{222}Rn y descendientes es distinta a la empleada cuando existe presencia de ^{226}Ra , circunstancia que sólo resulta apreciable si se estudia el espectro α de la muestra. Ambas situaciones, pueden observarse en los espectros representados en las **Fig.16 y 17** respectivamente, y se abordarán en el próximo capítulo sobre las calibraciones.

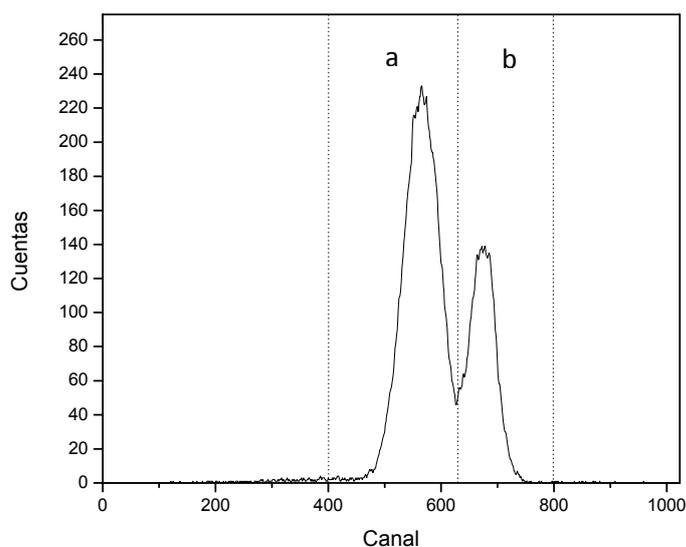


Fig.16: Espectro α de muestra con presencia de ^{222}Rn , ^{218}Po y ^{214}Po .

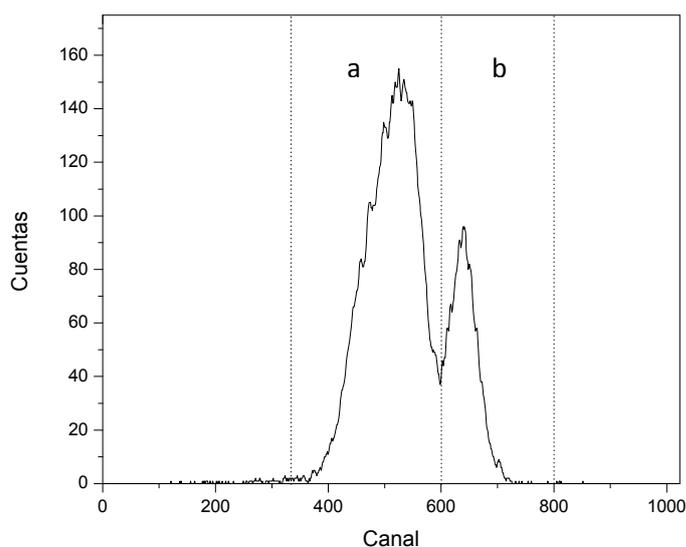


Fig.17: Espectro α de muestra con presencia de ^{226}Ra y descendientes.

La diferencia de la **Fig.16** con respecto a la **Fig.17** resulta evidente observando la mayor anchura del pico situado en la ventana (a), debido a la presencia del ^{226}Ra junto con ^{222}Rn y ^{218}Po mientras que en la ventana (b) se sitúa el ^{214}Po .

El separador integrado α/β del que consta el equipo se fija a través del parámetro "PLI" (Pulse Length Index) que emplea la diferencia de duración existente entre los pulsos emitidos por las partículas α (≈ 100 ns) frente a los pulsos más cortos de las β

(<30 ns). La representación gráfica de esta separación tiene lugar en un espectro 2-D como el que se observa en la **Fig.18**, donde el “eje x” representa los canales del 1 al 1024 con valores entre 1-64 (8.0 MeV) mientras que el “eje y” representa la longitud del pulso [WIS06].

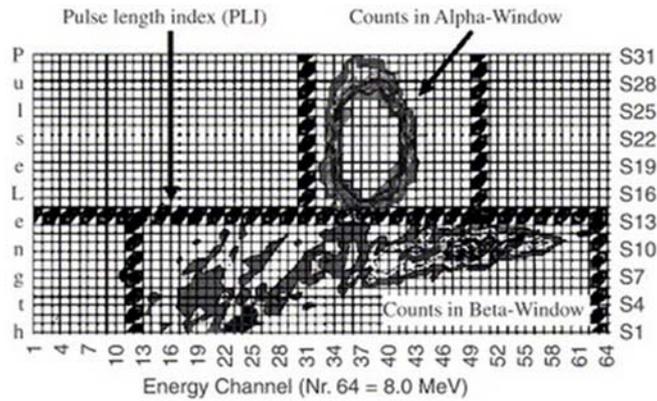


Fig.18: Espectro 2-D con muestra de ²²²Rn.

El resto de parámetros necesarios para la presentación de los resultados obtenidos en este equipo LSC se determinan usando las siguientes **expresiones** aplicando la teoría de propagación de errores [BEV03]:

σ_A (incertidumbre de la actividad) expresada en Bq·l⁻¹:

$$\sigma_A = A \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Ef}}{Ef}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_V}{V}\right)^2} \quad (\text{Eq.14})$$

Donde (σ_N/N) , (σ_{Ef}/Ef) y (σ_V/V) son las incertidumbres relativas asociadas al conteo de la muestra, a la eficiencia y al volumen, calculándose:

$$\frac{\sigma_N}{N} = \frac{\sqrt{G+B}}{G-B} \quad (\text{Eq.15})$$

La eficiencia se determina con las muestras calibradas donde “dpm” son las desintegraciones por minuto:

$$E_f = \frac{\text{cpm}}{\text{dpm}} \quad (\text{Eq.16})$$

$$\frac{\sigma_{E_f}}{E_f} = \sqrt{\left(\frac{\sqrt{\text{cpm}}}{\text{cpm}}\right)^2 + \left(\frac{\sqrt{\text{dpm}}}{\text{dpm}}\right)^2} \quad (\text{Eq.17})$$

En cuanto a la incertidumbre para el volumen, conocido el error de la pipeta que se emplea en la toma de muestra (según manual de la pipeta se indica 10^{-4} l), se calcula con la **Eq.18**:

$$\frac{\sigma_V}{V} = \frac{10^{-4}}{0.006} = 0.017 \quad (\text{Eq.18})$$

L_D (límite de detección) del equipo y AMD (actividad mínima detectable) del ensayo [CUR68]:

$$L_D = 2,71 + 4,65 \cdot \sqrt{B} \quad (\text{Eq.19})$$

$$\text{AMD} = \frac{L_D}{V \cdot T \cdot E_f \cdot 60} \quad (\text{Eq.20})$$

Con la aplicación de las **Eq. 13, 14, 19 y 20** quedan expresados los resultados que se obtienen con el equipo como $(A \pm \sigma_A)$ además del L_D en cpm o la AMD en $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.

3.2.2 Espectrómetro gamma HPGe(Li)

Se trata de una técnica de detección de radionúclidos emisores gamma que resulta aplicable a suelos, lodos, sedimentos, cenizas, filtros ambientales y en definitiva a cualquier muestra, siempre y cuando la emisión gamma este comprendida entre 30 y 3000 keV. De igual forma, se aplica también a la determinación de gas radón en agua a través de su descendiente el ^{214}Pb . En la **Tab.4**, se puede ver un amplio ejemplo de los distintos radionúclidos que pueden detectarse con este equipo:

Tab.4: Ejemplos de radionúclidos detectados por HPGe(Li).

Emisores gamma	Vida media	Línea de emisión (MeV)
^{241}Am	432.6 años	0.0597
^{60}Co	5.27 años	1.173
^{134}Cs	2.06 años	0.795
^{137}Cs	30.08 años	0.662
^{210}Pb	22.2 años	0.0469
$^{226}\text{Ra}(^{214}\text{Pb})$	1600 años	0.351
^{40}K	$1.277 \cdot 10^9$ años	1.460
$^{232}\text{Th}(^{228}\text{Ac})$	$1.405 \cdot 10^{10}$ años	0.911
$^{238}\text{U}(^{234}\text{Th})$	$4.468 \cdot 10^9$ años	0.063
$^{222}\text{Rn}(^{214}\text{Pb})$	3.82 días	0.351

El equipo empleado en este estudio es un espectrómetro ultrapuro de Germanio (Li) modelo Canberra GL-2015-7500 [GER00] que se puede ver en la **Fig.19**, cuyo mayor inconveniente es la elevada inestabilidad que presenta la distribución de litio a temperatura ambiente, por lo que debe operar a temperaturas muy bajas, como es la de evaporación del nitrógeno líquido (77K).



Fig.19: Espectrómetro gamma HPGe(Li).

Las interacciones de la radiación gamma incidente con el cristal semiconductor provoca la liberación de una cierta cantidad de carga eléctrica, cuya colección es posible gracias a la aplicación de una elevada diferencia de potencial (tensión de polarización), típicamente del orden de varios miles de voltios proporcionada por una fuente de tensión conectada al detector. Los pulsos eléctricos resultantes son proporcionales a las energías de los fotones emitidos que se almacenan en secuencias de incrementos finitos de energía equivalente a lo largo del intervalo completo del espectro donde se representan los picos para cada radionúclido detectado, donde su localización en el eje horizontal es una medida de la energía del fotón mientras el área bajo el pico lo es de la tasa de emisión [FUE15].

La actividad de ^{222}Rn se determina una vez transcurridas las 3 horas necesarias para alcanzar el equilibrio secular entre el radón y sus descendientes desde la preparación de la muestra [BEL95], a partir del recuento efectuado en la zona del espectro correspondiente al pico del ^{214}Pb (351.93 keV) que aparece en la ventana (a) y del ^{214}Bi (609.31 keV) que se encuentra en la ventana (b), ambos descendientes del radón, y que pueden apreciarse en la Fig.20.

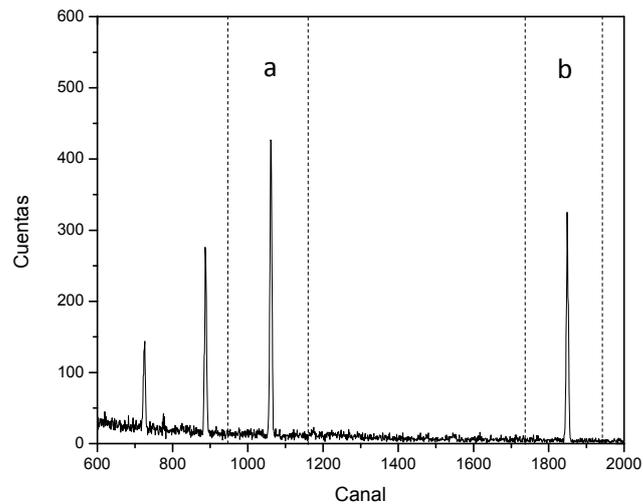


Fig.20: Espectro gamma en espectrómetro de HPGe

La fórmula general empleada para el cálculo de la actividad másica A en $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ es la que puede verse en la **Eq.21**:

$$A = \frac{(N-f)\cdot t}{m\cdot t\cdot PE\cdot E_f} \quad (\text{Eq.21})$$

Donde:

N son las cuentas del radionúclido en la energía E .

f es el valor del Fondo para esa energía en cps.

t es el tiempo de conteo en segundos.

m es la masa en kg.

PE es la proporción de emisión del radionúclido correspondiente.

E_f es la eficiencia para esa energía.

Para conocer la incertidumbre asociada al valor de la actividad $u(A)$ se utiliza la **Eq.22**:

$$u(A) = A \cdot \sqrt{u_{rel}^2(E_f) + u_{rel}^2(PE) + \frac{u^2(f)}{\left(\frac{N}{t} - f\right)^2} + \frac{\frac{N+B \cdot \left(1 + \frac{N_c}{8}\right)}{t_p \cdot t}}{\left(\frac{N}{t} - f\right)^2}} \quad (\text{Eq.22})$$

Donde:

B son las cuentas del background a la energía correspondiente.

Nc es el número de canales asignados al ROI del pico correspondiente.

t_p es el tiempo de conteo previsto.

u²_{rel}(E_f) es la incertidumbre relativa al cuadrado de la eficiencia.

u²_{rel}(PE) es la incertidumbre relativa al cuadrado de la proporción de emisión.

u²_{rel}(f) es la incertidumbre relativa al cuadrado del fondo.

Por último, para la determinación del límite de detección (L_D) se emplea la **Eq.23**:

$$L_D = \frac{3.29}{m \cdot PE \cdot E_f} \cdot \sqrt{10 \cdot u^2(f) + \frac{f + \left(1 + \frac{N_c}{8}\right) \cdot \left(\frac{B}{t}\right)}{t_p}} \quad (\text{Eq.23})$$

CAPÍTULO

4 Diseño del simulador, fuentes de ^{222}Rn en agua y toma de muestras.

4.1 Construcción del contenedor

4.2 Puesta a punto de fuentes de ^{222}Rn en agua

4.2.1 Cubeta transparente

4.2.2 Fuente de ^{222}Rn para el agua del contenedor

4.2.3 Nevera portátil

4.3 Puesta en marcha del simulador

4.4 Toma de muestras

4.5 Preparación de muestras.

En este **Capítulo** se procede a la descripción del desarrollo experimental realizado tanto en la construcción del acuífero simulado a escala laboratorio como en las distintas metodologías aplicadas en las tomas de muestras, que resultan necesarias para la aplicación en el capítulo posterior de los distintos modelos matemáticos aplicados en los procesos de recarga y descarga del acuífero tanto a nivel de laboratorio como en el caso real estudiado del Balneario de Las Caldas de Besaya.

4.1 Construcción del contenedor

Con el objetivo de reproducir los procesos de recarga y descarga que sufren los acuíferos naturales, se procedió a construir un acuífero artificial a escala de laboratorio. Para ello, el primer paso fue la elección del recipiente que contuviese el agua, tomando como contenedor el que puede apreciarse en la **Fig.21**.

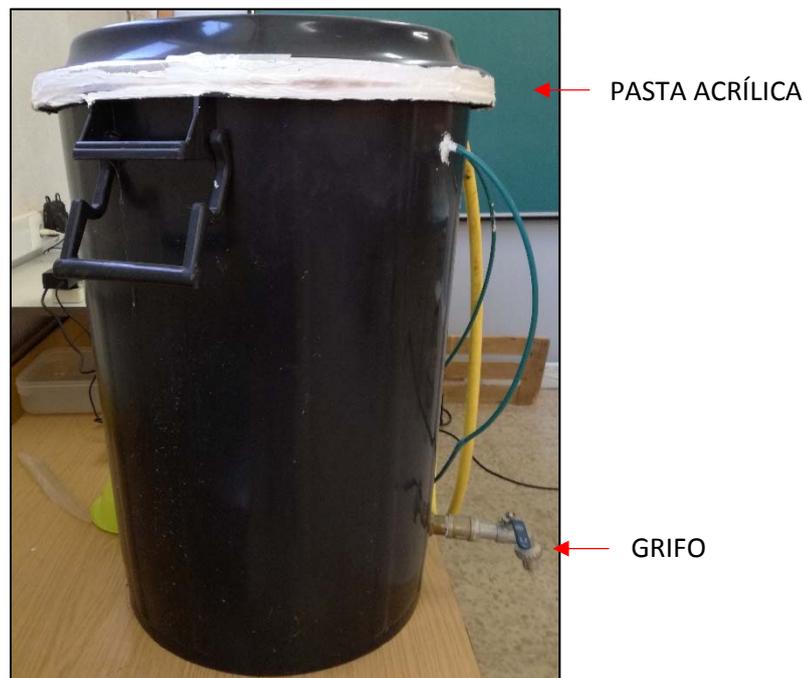


Fig.21: Cubo de plástico para reproducir un acuífero.

Observando la **Fig.21**, puede apreciarse en la parte inferior derecha como se ha incorporado a la estructura del cubo un grifo, de forma que la toma de muestras en cualquier instante resulta accesible, mientras que en la parte superior de la imagen destaca el color blanco de la pasta acrílica utilizada para sellar la tapa con el resto de la estructura y que sirve de aislante para las fugas de agua y de ^{222}Rn .

Si se observa desde arriba la tapa del contenedor (**Fig.22**), se pueden apreciar diferentes tubos y perforaciones que se han realizado para adaptarla a las distintas necesidades:

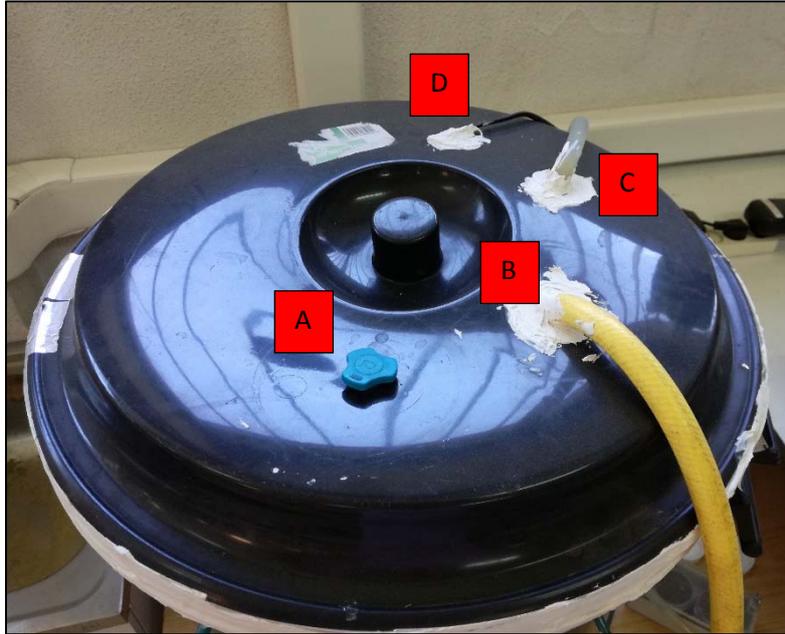


Fig.22: Imagen de la tapa empleada para cubrir el acuífero.

Donde:

A: tapón azul, donde se encuentra localizado el agujero a través del cual se recarga el acuífero con la ayuda de una manguera.

B: manguera de entrada del agua que vuelve del sistema de extracción de ^{222}Rn que se acopla al RTM.

C: manguera de salida del agua, que la lleva al sistema de extracción de ^{222}Rn del RTM.

D: cable de conexión eléctrica de la bomba que empuja el agua hacia el dispositivo de extracción de ^{222}Rn en agua acoplado al RTM.

4.2 Puesta a punto de fuentes de ^{222}Rn en agua

A continuación se describen las 3 fuentes de ^{222}Rn en agua que han sido empleadas en el desarrollo de este estudio.

4.2.1 Cubeta transparente

Una vez se dispone del contenedor del acuífero simulado, resulta necesario enriquecer el agua con ^{222}Rn , y para ello, se aplicó la experiencia que tenía nuestro grupo de trabajo en la construcción de un recipiente de agua enriquecida con ^{222}Rn en continuo [CEL15] con la ayuda de una fuente de ^{226}Ra . En esta **Fig.23** se puede observar la distribución que se realizó de los tubos de silicona en el interior del recipiente y que es semejante a la empleada posteriormente en la construcción del acuífero simulado. El objetivo de esta distribución, es repartirlos por todo el interior del recipiente para lograr que el ^{222}Rn se distribuya homogéneamente por todo el agua, con ayuda de una pequeña bomba.

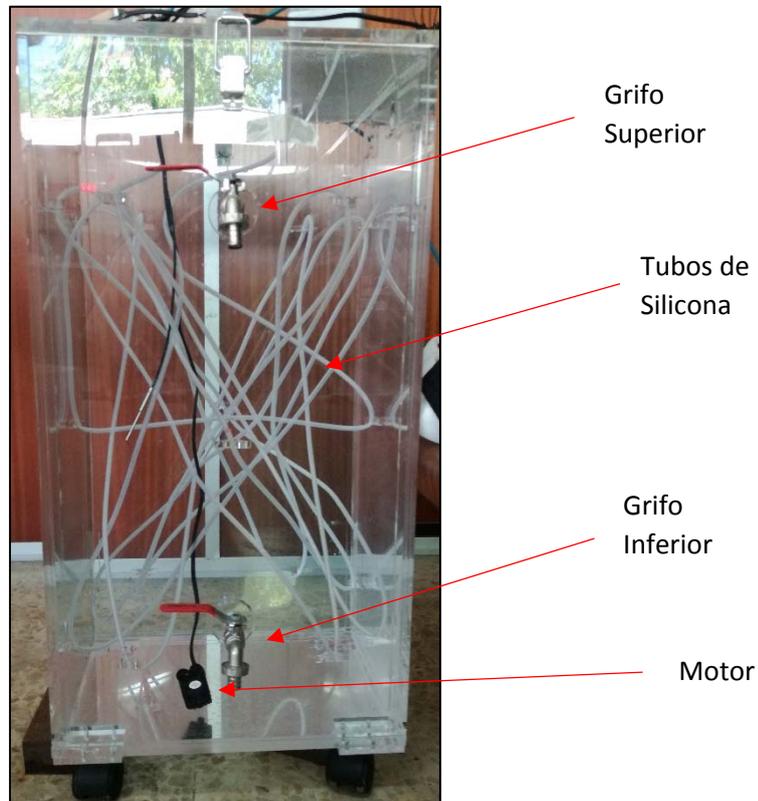


Fig.23: Cubeta transparente de agua enriquecida en continuo con ^{222}Rn .

Como puede apreciarse en la **Fig.24** el sistema dispone de una caja de metacrilato en cuyo interior hay 135 g de tierra con ^{226}Ra ($744.5 \pm 20.4 \text{ kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ medida realizada con espectrómetro gamma HPGe) que proporciona la cantidad suficiente de ^{222}Rn para lograr una concentración notable en el agua. Esta caja se encuentra conectada mediante tubos de plástico a una bomba que aplica un caudal de $0.03 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ de aire, distribuyendo el ^{222}Rn a lo largo de todos los tubos de silicona. El alto coeficiente de difusión que presenta la silicona frente al radón permite su transmisión al agua,

enriqueciendo el contenido hasta alcanzar un valor de equilibrio como se aprecia en la **Tab.5**.

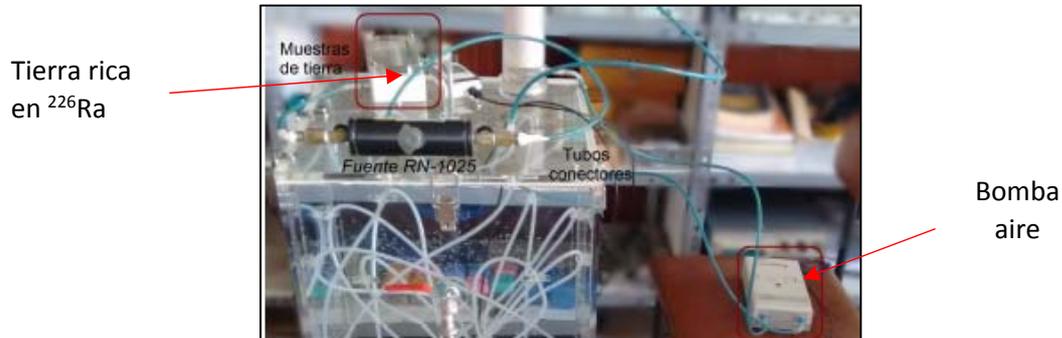


Fig.24: Fuente de ^{222}Rn y bomba de aire en cubeta transparente.

El agua de esta cubeta transparente fue controlada mediante la recogida de muestras tanto por el grifo superior como por el inferior durante un largo periodo de tiempo que comenzó en septiembre de 2015 hasta septiembre del 2016. En la **Tab.5** se pueden ver las fechas de recogida y los valores de ^{222}Rn obtenidos con el Triathler, evidenciando que el contenido de ^{222}Rn en su agua es bastante homogéneo. Dicha homogeneidad se logra con la presencia del motor en el fondo de la cubeta (**Fig.23**) que provoca la recirculación del agua generándose su mezcla.

Tab.5: Valores obtenidos en $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ por el Triathler para el agua de la cubeta transparente.

FECHA	DESCRIPCIÓN	TRIATHLER ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$)
18/09/2015	grifo superior	563 ± 59
	grifo inferior	573 ± 60
03/11/2015	grifo superior	572 ± 60
	grifo inferior	556 ± 58
26/01/2016	grifo superior	583 ± 61
	grifo inferior	579 ± 60
22/09/2016	grifo superior	607 ± 65
	grifo inferior	628 ± 67

4.2.2 Fuente de ^{222}Rn para el agua del contenedor

Los resultados obtenidos con la experiencia de la cubeta transparente fueron muy positivos, por lo que el diseño del acuífero simulado se basó en repetir esta experiencia con las adaptaciones necesarias para la recarga y descarga, así como para la medida de ^{222}Rn en continuo del agua realizada por el RTM que se comenta más adelante en el apartado 4.3.

Por último, respecto al diseño del contenedor de este acuífero simulado, cabe indicar que tiene una capacidad aproximada de 100 litros, pero para evitar problemas de desbordes y posibles fugas, se decidió no llenarlo completamente, alcanzándose un volumen de agua en su interior de aproximadamente 96 litros. El agua de carga que se empleó en la recarga inicial del acuífero fue de la red pública.

Para alimentar al acuífero con ^{222}Rn se aplicó la experiencia anteriormente acumulada en la construcción de la cubeta transparente, y se decidió emplear 271g de la tierra anteriormente empleada en la cubeta transparente ($744.5 \pm 20.4 \text{ kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$) con el objetivo de que exhalara valores muy elevados de ^{222}Rn tal como se muestra a continuación. La **Fig.25** muestra en qué consiste lo anteriormente descrito.

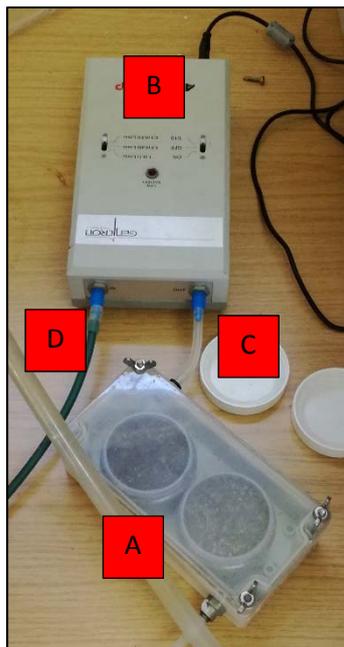


Fig.25: Sistema de aporte de ^{222}Rn al agua del acuífero.

Donde:

- A) es una caja de dimensiones 8 x 16 x 5.5 cm (largo x ancho x alto), en cuyo interior se tienen 2 recipientes cilíndricos de 100 ml llenos de la tierra con una actividad total en ^{226}Ra de 201.8 ± 5.5 kBq, que presenta un elevado poder de exhalación de ^{222}Rn . En la caja, también se observan 2 tubos, uno viene con el aire impulsado por la bomba y el otro de salida que se introduce en el acuífero.
- B) es una bomba, que suministra un caudal de aire de $0.03 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ suficiente para arrastrar el aire con ^{222}Rn generado en la cajita.
- C) es el tubo de salida de la bomba.
- D) es el tubo de retorno del acuífero que entra en la bomba.

Para la distribución del ^{222}Rn en el interior del acuífero, se han empleado 945 cm de tubo de silicona que presenta un alto coeficiente de difusión al ^{222}Rn comportándose como si fuera transparente y permitiendo con gran facilidad su transferencia al agua. Con el objetivo de predecir la cantidad de ^{222}Rn que se llegaría a tener en el agua con las fuentes seleccionadas y valorar su idoneidad, previamente a su colocación en el acuífero se decidió introducir la bomba junto con la cajita (fuentes en su interior) y los 945 cm de tubo en una caja de acero de dimensiones exteriores 30 x 30 x 30 cm (**Fig.26**). En el interior de la caja de acero se introdujo también el Radon scout 1138 para controlar la concentración de ^{222}Rn que se generaba en su interior.



Fig.26: Caja de acero de 30 x 30 x 30 cm en cuyo interior se colocó el sistema de generación de ^{222}Rn junto al Radon scout 1138.

La caja permaneció cerrada aproximadamente 30 horas, y posteriormente se abrió para recuperar los valores registrados por el Radon scout. Estos valores posteriormente se representaron en la **Fig.27** donde se puede ver como la concentración de ^{222}Rn en aire comienza en $0 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ y llega a alcanzar alrededor de los $750000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ en el momento que se abrió la caja.

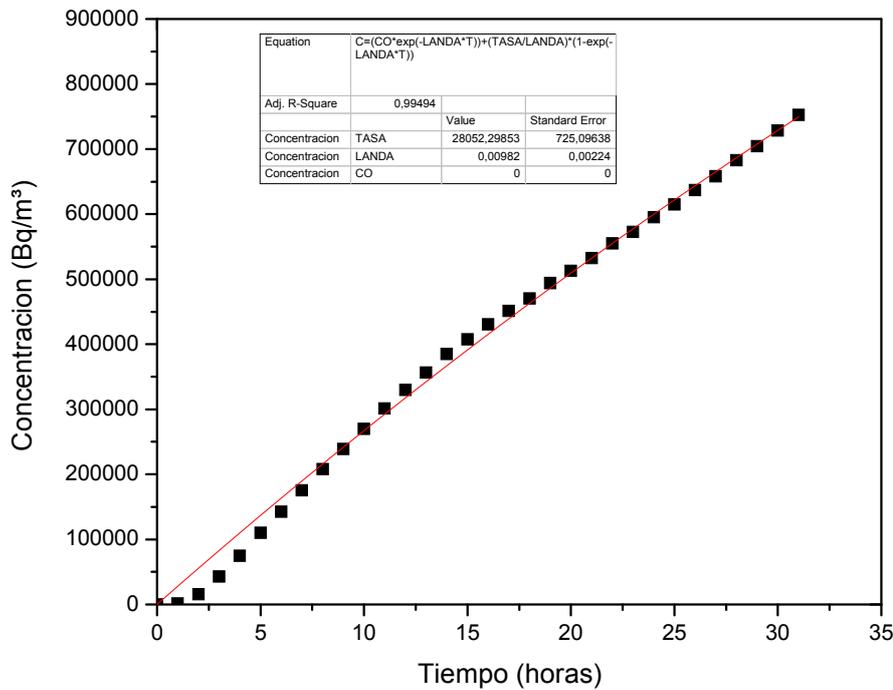


Fig.27: Crecimiento de ^{222}Rn generado con bomba, fuentes y tubos en interior de caja de acero controlado con Radon Scout

Además de la representación de los valores proporcionados por el Radon scout, el objetivo de esta experimentación fue realizar un ajuste de los resultados obtenidos respecto a la **Eq.24**, que permite saber la concentración de ^{222}Rn que se alcanzará en un sistema una vez se alcance el equilibrio simplemente con unas horas de observación.

$$C(t) = C_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} + \frac{\phi}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t}) \quad (\text{Eq.24})$$

$$\lambda = \lambda_{\text{Rn}} + \lambda_v \quad (\text{Eq.25})$$

Donde:

C es la concentración de ^{222}Rn en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$.

t es el tiempo en h.

λ es una constante de desintegración en h^{-1} (Eq.25).

ϕ es la tasa de emisión del radón en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{h}^{-1}$.

λ_{Rn} representa la constante de desintegración del radón (h^{-1}).

λ_v representa la constante de fugas del sistema (h^{-1}).

C_{max} es la concentración máxima que se alcanzará en el sistema en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$.

C_0 es la concentración inicial ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$).

Los parámetros obtenidos en el ajuste (línea roja) de la **Fig.27** con un R-square de 0.99 son los siguientes:

$$\left\{ \begin{array}{l} C_0 \text{ tiene un valor de } 0 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}, \text{ por lo que el primer término de la Eq.24 desaparece.} \\ \lambda \text{ presenta un valor de } 0.0098 \pm 0.0022 \text{ h}^{-1}. \\ \phi \text{ tiene un valor de } 28052 \pm 726 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{h}^{-1}. \end{array} \right.$$

Conocidos estos parámetros, solo falta aplicar la **Eq.26**, para conocer la concentración máxima de ^{222}Rn que se alcanzará en el sistema cuando se alcance el equilibrio secular en su interior.

$$C_{\text{max}} = \frac{\phi}{\lambda} \quad (\text{Eq.26})$$

$$C_{\text{max}} = \frac{28052}{0.0098} = 2.862 \cdot 10^6 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \quad (\text{Eq.27})$$

El resultado que se obtiene con la **Eq.27** se interpreta como que el sistema formado por la bomba, la cajita con la tierra y los 945 cm de tubo de polietileno proporcionarán al acuífero una concentración máxima de ^{222}Rn en aire de $2.862 \cdot 10^6 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, previsión que se valorará más adelante cuando se vean las concentraciones reales que mide el RTM en el agua del acuífero simulado.

Sustituyendo en la **Eq.24** los parámetros obtenidos con el ajuste se obtiene la **Eq.28** que permitirá conocer la concentración teórica de ^{222}Rn en aire en cualquier instante “t” en el sistema.

$$C(t) = 2.862 \cdot 10^6 \cdot (1 - e^{-0.0098 \cdot t}) \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} \quad (\text{Eq.28})$$

4.2.3 Nevera portátil

Para simular la recarga de un acuífero con aguas subterráneas que presentan valores significativos de ^{222}Rn en agua y que se emplearon en las distintas simulaciones que se describen en el **Capítulo 6**, se desarrolló la fuente que puede verse en la **Fig.28**. Para construir esta fuente se utilizó una nevera portátil cargada con agua del grifo en cuyo fondo se situó un cuenco de cristal con tierras ricas en ^{226}Ra ($744.5 \pm 20.4 \text{ kBq} \cdot \text{kg}^{-1}$) cerrado en su parte superior con una tapa elástica de silicona que permite fácilmente la difusión de ^{222}Rn al agua.

El único objetivo de esta fuente es lograr agua con una concentración de ^{222}Rn elevada que permitiera ver el cambio significativo en la concentración de ^{222}Rn en el agua del acuífero simulado cuando se realizasen las recargas. Las concentraciones obtenidas para las aguas empleadas en las diferentes recargas simuladas con aguas subterráneas fueron distintas en función de la cantidad de agua utilizada en el llenado de la nevera y del grado de humedad que iba acumulando la tierra en el interior del cuenco. Las actividades de las aguas de recarga empleadas se indican más adelante dentro de la descripción de cada episodio de simulación realizado.

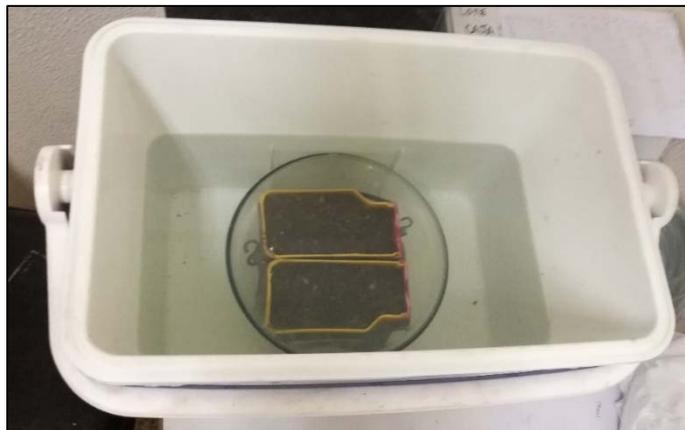


Fig.28: Preparación de agua rica en ^{222}Rn en una nevera portátil.

4.3 Puesta en marcha del simulador

Una vez finalizado el diseño de la distribución de ^{222}Rn en el acuífero, el siguiente paso fue formar la estructura completa del acuífero uniendo todos los componentes comentados anteriormente, tal como puede apreciarse en la **Fig.29** y que se enumeran a continuación:

- 1) Recipiente del acuífero.
- 2) Sistema generador de ^{222}Rn .
- 3) Kit para de medida de ^{222}Rn en agua.
- 4) RTM.

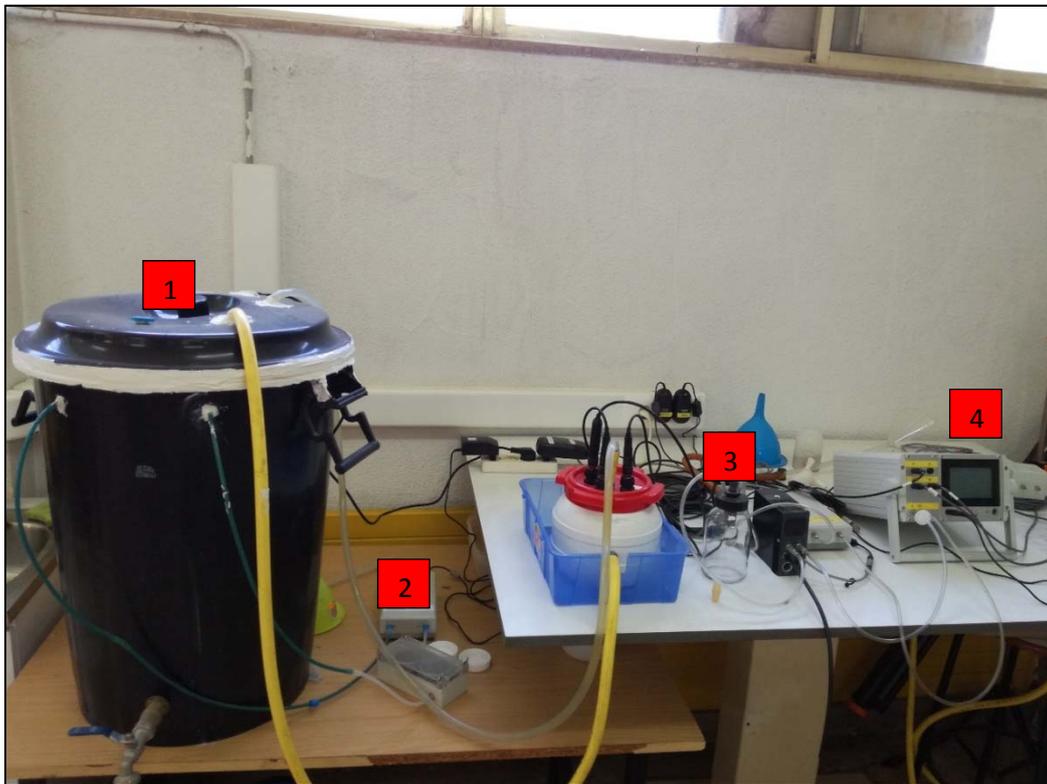


Fig.29: Visión general del acuífero simulado alimentado con ^{222}Rn y controlado en continuo con RTM.

El primer paso una vez construido, fue proceder a su carga a través del tapón azul de la parte superior con ayuda de una manguera conectada a un grifo cercano. Como anteriormente se comentó, se llenó con aproximadamente 96 litros de la red pública con un contenido inicial en ^{222}Rn de $0 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ que el RTM comenzó a registrar desde que se terminó la carga el día 7/06/2016.

Se dejó transcurrir el tiempo suficiente para que el sistema según las lecturas proporcionadas por el RTM alcanzase el equilibrio, de forma que una vez transcurridos cerca de 42 días se decidió analizar la información registrada por el RTM. En la **Fig.30**, se representan las concentraciones de ^{222}Rn registradas por el RTM (color rojo) en el acuífero simulado frente al cálculo teórico previsible en aire para esa misma fuente según la **Eq.28** (color negro).

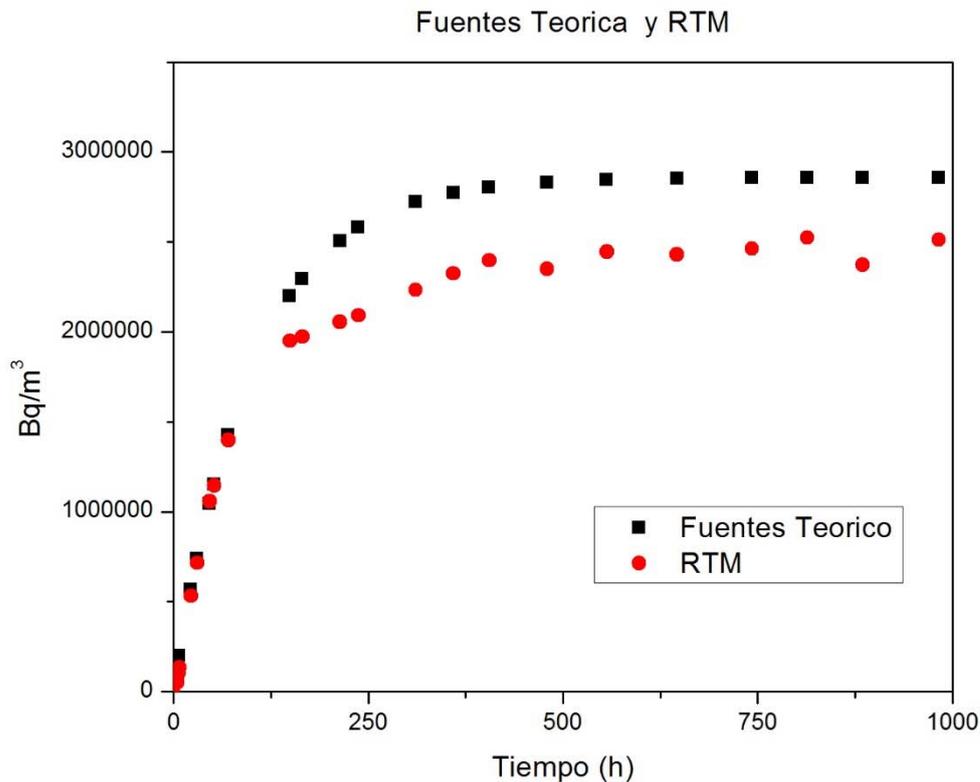


Fig.30: Comparativa de la concentración de ^{222}Rn en el acuífero simulado medida por el RTM frente a la prevista teóricamente para esa fuente en aire.

Como puede apreciarse en la **Fig.30** existe una pequeña diferencia entre ambos registros que gira entorno al 12% cuya explicación puede deberse a las fugas de radón que experimenta el sistema así como a la diferencia de difusión del ^{222}Rn a través de los tubos de silicona en el agua frente al aire. Los resultados que registra el RTM en el acuífero son lo suficientemente elevados para poder ver cambios significativos en los procesos de recarga y descarga.

De la **Fig.30** se pueden comparar el valor máximo registrado por el RTM una vez alcanzado el equilibrio que fue de $2.512 \cdot 10^6 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ frente a los $2.862 \cdot 10^6 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ previstos teóricamente en aire que se obtuvieron aplicando la **Eq.27**.

El siguiente paso fue aplicar a los datos registrados por el RTM durante este proceso inicial de carga el factor de calibración obtenido frente al Triathler (**Eq.36**) para transformar sus lecturas de $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ a $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ y que se indica en el **apartado 5.3.1** de este estudio. Se aprovechó en esta **Fig.31** para representar estos valores del RTM modificados con este factor (color rojo) frente a los valores reales que presentaba el Triathler (color negro) para las muestras cogidas durante este periodo, y representado únicamente los instantes donde existía recogida de muestra para la técnica LSC.

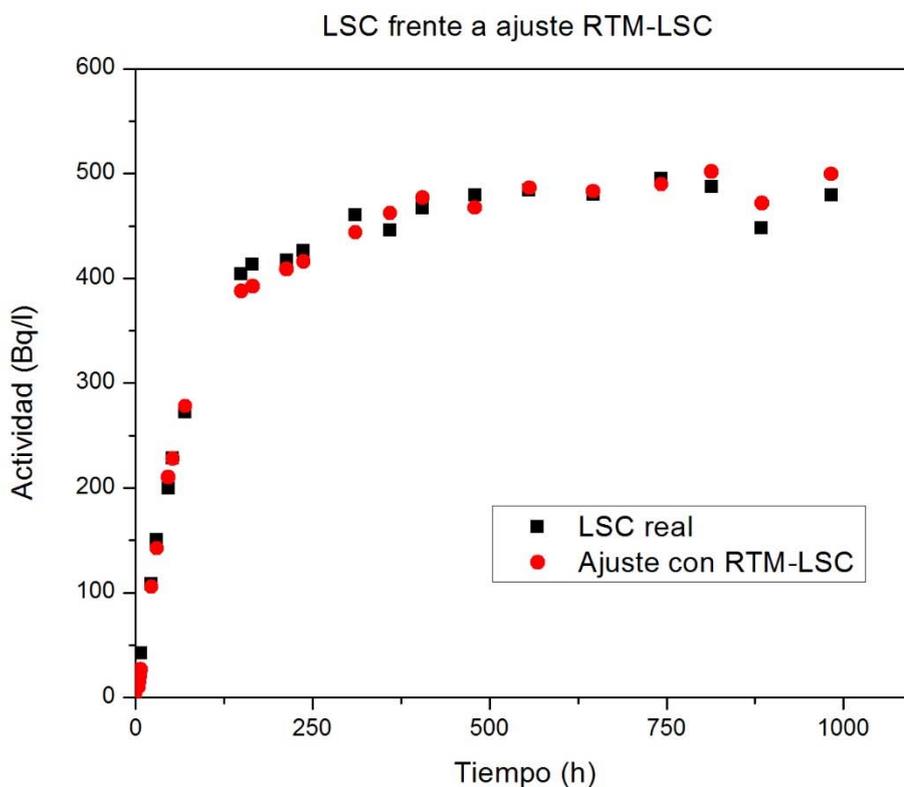


Fig.31: Comparativa de la concentración de ^{222}Rn en el acuífero medida por el RTM una vez aplicada factor de calibración a $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ frente a la facilitada por el Triathler.

Visualmente se observa que los valores representados por ambas técnicas son prácticamente similares, lo que evidencia que la calibración realizada frente al Triathler es plenamente satisfactoria y a partir de este momento los valores del RTM serán representados en $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.

A pesar que gráficamente resulta evidente su similitud, resulta necesario aplicar un test estadístico (t-Student) para confirmar matemáticamente que los resultados registrados por ambas técnicas no son significativamente distintos con una confianza

del 95%. El resultado de aplicar este análisis estadístico ofrece un p-valor de 0.88 que confirma todo lo anteriormente comentado.

4.4 Toma de muestras

En este punto se debe distinguir entre la metodología aplicada para la recogida de muestras de agua fuera del laboratorio y la aplicada al acuífero simulado creado en el laboratorio.

En los muestreos de exterior, como es el caso que se analiza en el **apartado 7.2** del Balneario de Las Caldas de Besaya, la toma de muestra se realiza sumergiendo completamente una botella de 1 l en el interior del pozo. Una vez se regresa al laboratorio, se traspasa el contenido necesario de la botella al recipiente específico para medir en el germanio que fue la técnica empleada, evitando el burbujeo que puede provocar pérdidas de ^{222}Rn al aire.

La toma de muestras de agua en el acuífero simulado se realizó a través del grifo que posee el contenedor, recogiendo la muestra en un vaso de precipitados de 100 ml. El proceso consistió en pegar el grifo a la pared del vaso, evitando en todo momento burbujeados y salpicaduras que originasen pérdidas del contenido en ^{222}Rn , lo que implicaba un caudal muy pequeño de agua.

En el siguiente apartado se procede a describir la preparación de las muestras de aguas para poder introducir las a medir en el Germanio y en el Triathler.

4.5 Preparación de muestras

Los recipientes de plástico (**Fig.32**) empleados para la medida de muestras en el espectrómetro HPGe(Li) se llenan completamente tratando de minimizar el espacio existente entre la superficie del líquido y la parte inferior de la tapa. De este modo se consigue eliminar la presencia de aire libre en el interior del recipiente y se cierra con doble tapón para evitar fugas. Estos botes cilíndricos tienen un volumen aproximado de 270 ml, con un \varnothing de 8 cm y una altura de 6.5 cm que presentan a concentraciones bajas/medias como son las empleadas en este estudio, fugas de radón que no alteran los resultados.

El trasvase de la muestra original a estos recipientes debe hacerse con el suficiente cuidado de evitar burbujeos y salpicaduras, siendo recomendable que el agua descienda lentamente por una de las paredes del recipiente hasta alcanzar el volumen deseado.



Fig.32: Recipiente empleado para la medida de muestras en el Germanio.

Los recipientes empleados en el Triathler (**Fig.33**) son de cristal con forma cilíndrica y con un volumen aproximado de 20 ml. Sus dimensiones son $\varnothing= 2.7$ cm y una altura de 6 cm. Para la preparación de las muestras, se necesita la ayuda de una pipeta con la que se toman 6 ml de agua del recipiente original para introducirlos en el interior del vial donde previamente se han introducido 14 ml de líquido centellador con ayuda de una pipeta para líquidos densos, siendo importante introducir la muestra por debajo del líquido centellador y someter inmediatamente el vial a una agitación manual intensa durante al menos 30 segundos que permita la homogenización de la muestra acuosa con el líquido.



Fig.33: Recipiente empleado para la medida de muestras en el Triathler.

CAPÍTULO

5 Calibraciones, verificaciones e intercomparaciones de los equipos de medida

5.1 Control de calidad de la técnica de centelleo líquido

5.1.1 Estudio de estanqueidad de los viales de cristal

5.1.2 Calibración

5.1.3 Ejercicios de intercomparación

5.2 Control de calidad de la técnica de espectrometría gamma

5.2.1 Calibración en energías

5.2.2 Calibración en eficiencia

5.2.3 Intercomparación con Triathler 425-034

5.2.4 Ejercicios de intercomparación

5.3 Calibración del KIT de medida de ^{222}Rn en agua del RTM 2100

5.3.1 Calibración respecto al Triathler 425-034

5.3.2 Calibración respecto al espectrómetro gamma HPGe(Li)

5.4 Calibración del Radon scout

5.5 Calibración del RAD7 radon detector

En este **Capítulo** se procede a la descripción de los distintos procesos de calibración/verificación de los equipos descritos en el **capítulo 3** de este estudio, así como de la participación en ejercicios de intercomparación de los equipos de medida de ^{222}Rn en agua, de forma que se garantiza un control de calidad de las medidas realizadas con los equipos empleados en este estudio.

5.1 Control de calidad de la técnica de centelleo líquido

Para la medida de ^{222}Rn en agua con el Triathler, se emplean viales de cristal de 20 ml en cuyo interior se introducen 14 ml de líquido centellador con ayuda de una pipeta, para posteriormente introducir 6 ml de la muestra a medir siempre por debajo del líquido centellador evitando de esa forma la pérdida de radón contenido en la muestra a analizar. Para finalizar el proceso se somete el vial a una agitación manual intensa durante al menos 30 segundos que permite la homogenización de la muestra con el líquido centellador, y se dejan reposar 3 horas las muestras antes de medir [BEL95], tiempo necesario para alcanzar el equilibrio secular entre el ^{222}Rn y sus descendientes de vida corta (^{218}Po y ^{214}Po).

5.1.1 Estudio de estanqueidad de los viales de cristal

Antes de comenzar con la calibración del equipo, resulta necesario verificar previamente la estanqueidad de los viales de cristal empleados, y comprobar si existen fugas de radón que puedan introducir incertidumbres a los resultados obtenidos por el Triathler. Para ello, se empleó un circuito cerrado consistente en una pequeña caja de metacrilato de dimensiones 16 x 8 x 5.5 cm (largo x ancho x alto) con una entrada y salida unidas al RAD7 (**Fig.34**). En el interior de la caja se introdujeron 6 viales preparados cada uno con 6 ml de una muestra de $1503 \pm 61 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ (agua con ^{226}Ra) y 14 ml de líquido centellador. Indicar que los valores de ^{222}Rn en aire en el interior de la caja fueron controlados antes, durante y después de introducir los viales con el fin de observar las posibles variaciones de ^{222}Rn sobre el fondo existente en la caja.



Fig.34: Equipo de RAD7 junto con caja de metacrilato con 6 viales en su interior.

Los resultados del control de estanqueidad realizado en los viales, se pueden observar en la **Fig.35** que muestra la evolución de radón en aire durante el periodo de exposición de los 6 viales en el interior de la caja de metacrilato. Las ventanas (a) y (c) corresponden a los periodos de tiempos anterior y posterior a introducir los viales, mientras que la ventana (b) corresponde al periodo de tiempo en el que los viales estuvieron en el interior de la caja. Gráficamente se observa un incremento medio de actividad en la ventana (b) respecto a las ventanas (a) y (c) entorno a $15 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, que implicaría una aportación por vial de $2.5 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$.

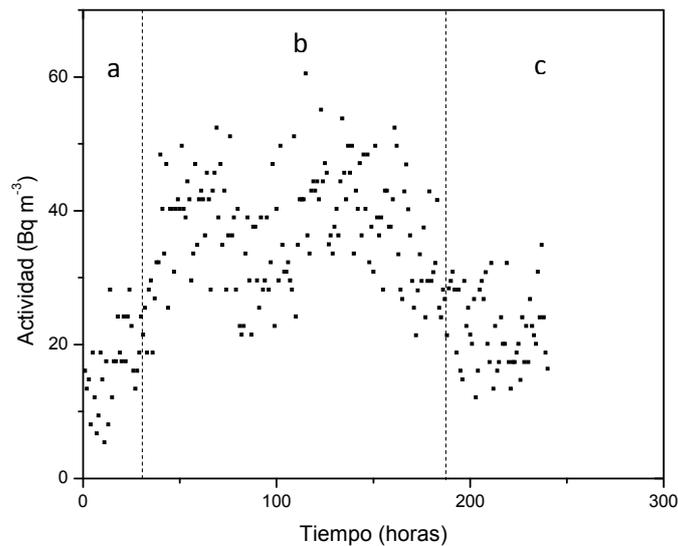


Fig.35: Control de ^{222}Rn en caja de metacrilato con 6 viales.

En la **Tab.6**, se presentan los valores de radón en el agua del interior del vial (Rn_1) medidos con el Triathler, del radón en el aire del vial (Rn_2) y del radón que se escapa fuera del vial (Rn_3) medido con el Rad7. El valor de Rn_2 se ha calculado aplicando a Rn_1 el factor de transferencia de 10^{-4} [KIT96]. Con objeto de comparar Rn_1 y Rn_3 con el resultado de aplicar este factor (Rn_2) las unidades están en $Bq \cdot cm^{-3}$.

Tab.6: Estimación de las fugas de ^{222}Rn en viales LSC con actividad ($Bq \cdot l^{-1}$) conocida.

Muestra	Actividad ^{222}Rn	
	$Bq \cdot l^{-1}$	$Bq \cdot cm^{-3}$
Rn_1	1503 ± 61	1.5 ± 0.1
Rn_2	$(1503 \pm 61) \cdot 10^{-4}$	$(1.5 \pm 0.1) \cdot 10^{-4}$
Rn_3	$(2.5 \pm 1.3) \cdot 10^{-3}$	$(2.5 \pm 1.3) \cdot 10^{-6}$

Con los valores de la **Tab.6**, se puede indicar que el 1.7% del ^{222}Rn que existe en el aire del vial se fuga al exterior, pero con respecto al radón del agua del vial representa el $1.7 \cdot 10^{-4}\%$. Este valor coincide con el encontrado en estudios anteriores que, además, mostraban pérdidas de radón de hasta el 70% en viales de plástico pero inexistencia de fugas cuando los viales empleados eran de cristal [VIT91]. Con los resultados obtenidos se puede aseverar que los viales de cristal utilizados en nuestro estudio evitan las fugas de radón y permiten medidas fiables del contenido en su interior.

5.1.2 Calibración

Con el objetivo de fijar la eficiencia del equipo se realizó la calibración, y para ello partiendo de una fuente certificada de ^{226}Ra del NIST (National Institute of Standards and Technology), con actividad másica según certificado de $2482 Bq \cdot g^{-1}$, se prepararon distintas muestras calibradas con distintas actividades.

A partir de esta fuente original certificada, se preparó una disolución madre en un matraz aforado de 250 ± 12 ml, según los siguientes pasos:

- i) se añadió una pequeña cantidad de agua destilada en el matraz y se anotó la masa: 135.5770 g. Se empleó una balanza de sensibilidad 0.0001g.
- ii) se abrió la ampolla patrón y se vertió su contenido en el matraz, anotándose de nuevo la masa: 140.5474 g.

iii) se agitó el contenido del matraz para lograr una buena homogeneización del contenido y se enrasó hasta la marca con agua destilada.

La actividad de la fuente de ^{226}Ra según su certificado a fecha 01/09/2001 es de $2482 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, calculando su actividad a fecha de la preparación de estas calibradas (21/04/2015) resulta que la actividad de la muestra certificada es de $2467 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$, por tanto, la actividad de la disolución madre preparada será la calculada según la **Eq.29**:

$$A (\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}) = \frac{(140.5474 - 135.5770) \text{g} \cdot 2467 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}}{0.250 \text{ l}} = 49048 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} \quad (\text{Eq.29})$$

Una vez disponemos de esta disolución madre de actividad $49048 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, repitiendo pasos similares a los anteriormente descritos, se fueron preparando distintas muestras calibradas en matraces de 50 ml con las siguientes actividades:

- a) Calibrada A, con actividad $2943 \pm 88 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.
- b) Calibrada B, con actividad $843 \pm 25 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.
- c) Calibrada C, con actividad $296 \pm 9 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.
- d) Calibrada D, con actividad $100 \pm 3 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.
- e) Calibrada E, con actividad $32 \pm 1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.
- f) Calibrada F, con actividad $20 \pm 1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.
- g) Calibrada G, con actividad $12 \pm 1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.

Con las calibradas en matraces, el siguiente paso fue la preparación de 3 viales para cada una de las actividades, añadiendo a cada vial de cristal 6 ml de disolución por debajo de los 14 ml de líquido centelleante que previamente se habían añadido. Una vez cerrados los viales, se dejaron 40 días en reposo [KIT10] permitiendo el crecimiento de radón y sus descendientes antes de proceder a su medida con el equipo.

Transcurrido el tiempo necesario para que el ^{226}Ra , ^{222}Rn y sus descendientes alcanzaran el equilibrio secular, se midieron los viales con los resultados que se aprecian en la **Tab.7**, donde el valor obtenido en el Triathler para la actividad es el valor

medio de los 3 viales para cada una de las calibradas preparadas a partir de la **Eq.13** vista en el **Capítulo 3**.

Estos primeros resultados de actividades (**Tab.7**) que se obtuvieron aplicando la eficiencia especificada por el manual de 2.8 (3.73 cuando hay presencia de ^{226}Ra) muestran diferencias significativas con respecto a los valores teóricos de las muestras calibradas preparadas, que van mucho más allá de una simple variación del valor de la eficiencia que permitiera acercar esos valores. La explicación se encuentra en la interferencia que generan el ^{210}Pb (emisor β , 22 años), ^{210}Bi (emisor β , 5 días) y ^{210}Po (emisor α , 140 días) descendientes lejanos del ^{226}Ra y que se encuentran en las muestras estándar de ^{226}Ra que no han sido purificadas en los últimos 10 años (la calibrada empleada en este estudio de ^{226}Ra adquirida al NIST tiene fecha 1 de septiembre del 2003 pero no ha sido purificada según certificado desde hace 67 años).

Tab.7: Relación entre valores de las calibradas y las actividades medidas con el Triathler.

Descripción vial	Valor Teórico (Bq·l ⁻¹)	Valor Triathler (Bq·l ⁻¹)	Diferencia %
Calibrada A	2943 ± 88	3360 ± 323	12
Calibrada B	843 ± 25	969 ± 96	13
Calibrada C	296 ± 9	350 ± 37	15
Calibrada D	100 ± 3	120 ± 15	17
Calibrada E	32 ± 1	42 ± 7	24
Calibrada F	20 ± 1	26 ± 5	23
Calibrada G	12 ± 1	18 ± 4	33

La actividad de estos radionúclidos se estima puede estar entorno al 27% de la fijada para el radio cuando han transcurrido 10 años desde su purificación. Con objeto de poder estimar el error debido a la presencia de estos descendientes en las muestras calibradas preparadas en este estudio y poder fijar el valor de la eficiencia, se determinó la actividad teórica que debieran presentar estos radionúclidos teniendo en cuenta la fecha de preparación de la fuente del NIST, empleando para ello la siguiente **Eq.30** [SAL10]:

$$A_{Pb} = A_{Bi} = A_{Po} = A_{Ra} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (\text{Eq.30})$$

Donde:

A_{Pb} = actividad del ^{210}Pb en la muestra en dpm.

A_{Bi} = actividad del ^{210}Bi en la muestra en dpm.

A_{Po} = actividad del ^{210}Po en la muestra en dpm.

A_{Ra} = actividad del ^{226}Ra en la muestra en dpm.

t = tiempo transcurrido desde la purificación del ^{226}Ra .

λ = constante de desintegración del ^{210}Pb

En la última columna de la **Tab.8** se aprecian las estimaciones realizadas para el cálculo teórico de ^{210}Po presente en cada vial de las muestras calibradas después de aplicar la **Eq.30** descrita anteriormente.

Tab.8: Cálculos de las actividades de ^{210}Po estimadas presentes en las muestras calibradas frente a las actividades teóricas que presentan de ^{226}Ra .

Descripción vial	Actividad Teórica ^{226}Ra (Bq·l ⁻¹)	Actividad Teórica ^{226}Ra (dpm)	Actividad estimada $^{210}Pb=A_{Bi}=A_{Po}$ (dpm)
Calibrada A	2943 ± 88	1060	927
Calibrada B	843 ± 25	303	265
Calibrada C	296 ± 9	107	93
Calibrada D	100 ± 3	36	32
Calibrada E	32 ± 1	12	10
Calibrada F	20 ± 1	7	6
Calibrada G	12 ± 1	4	4

Una vez se estimó la actividad del ^{210}Po , con los resultados que pueden verse en la última columna de la **Tab.8**, se procedió a determinar las cuentas a las que correspondían dichas actividades para eliminarlas de las determinadas por el equipo. Indicar que para lograr determinar un valor definitivo de eficiencia se jugó con distintos valores de eficiencias hasta lograr obtener valores similares entre las actividades teóricas y las experimentales siguiendo lo que se describe a continuación.

En la primera columna de la **Tab.9**, se calculan las “cpm” debidas al ^{210}Po , multiplicando las “dpm” teóricas estimadas en la **Tab.8** por el valor de la eficiencia, de forma que en la segunda columna se restan esas cuentas a las obtenidas por el equipo al medir cada calibrada. Finalmente, en la tercera columna se calcula la actividad de cada muestra aplicando la **Eq.13** con la eficiencia correspondiente, en el caso de la **Tab.9** fue de 0.87 por radioisótopo presente.

Tab.9: Cálculos de las actividades de ^{222}Rn una vez eliminadas las actividades del ^{210}Po .

Descripción vial	$\text{cpm}_{\text{Po}} =$ ($\text{dpm}_{\text{Po}} \cdot \text{Ef}=0.87$)	$\text{cpm}_{\text{totales}} - \text{cpm}_{\text{Po}}$	Actividad muestra eliminada Po ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$)	Actividad Teórica calibrada ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$)
Calibrada A	809	3704	2947 ± 284	2943 ± 88
Calibrada B	232	1071	851 ± 113	843 ± 25
Calibrada C	81	390	309 ± 33	296 ± 9
Calibrada D	28	135	106 ± 14	100 ± 3
Calibrada E	9	49	38 ± 7	32 ± 1
Calibrada F	5	31	23 ± 5	20 ± 1
Calibrada G	3	23	17 ± 4	12 ± 1

Observando las dos últimas columnas de la **Tab.9** se aprecia que los valores de las actividades estimadas con el Triathler y los valores teóricos de las calibradas presentan valores similares teniendo en cuenta sus respectivas incertidumbres. Esto permite determinar definitivamente que la eficiencia a emplear en el equipo será de 0.87 por radionúclido que aparezca en el espectro, por tanto, eficiencia de 2.62 cuando se mida una muestra de ^{222}Rn sin presencia de ^{226}Ra y de 3.49 cuando el espectro de la muestra indique presencia de ^{226}Ra .

El siguiente paso fue la participación en ejercicios de intercomparación tanto nacionales como internacionales con el objetivo de garantizar que los valores de eficiencia fijados para el Triathler permitían obtener resultados de actividades adecuados.

5.1.3 Ejercicios de intercomparación

Finalizada la calibración del equipo, se participó y se sigue participando anualmente en diferentes intercomparaciones nacionales e internacionales de ^{222}Rn en agua con el objetivo de verificar que los parámetros fijados son los correctos o por el contrario que los resultados aconsejan introducir correcciones a los mismos.

Las participaciones en ejercicios de intercomparación nacionales para la medida de ^{222}Rn en agua han sido las siguientes:

- 1) Noviembre de 2014, con el Laboratorio de Emergencias y Calidad del Agua de la Universidad Rovira i Virgili de Tarragona, a quién se envió una muestra de agua de la mina de uranio de Saelices el Chico (Salamanca) recogida por nuestro grupo de trabajo.
- 2) Noviembre del 2015, en la organizada por nuestro grupo de trabajo junto con IPROMA S.L con la participación de 11 laboratorios nacionales.
- 3) Diciembre de 2016, en la organizada nuevamente por nuestro grupo de trabajo en colaboración con IPROMA S.L en la que participaron 17 laboratorios nacionales.

De igual forma a la descripción de la participación en ejercicios nacionales, la participación en ejercicios de intercomparación a nivel internacional ha sido:

- 1) Agencia de Protección Ambiental de Irlanda, 2013, en la que participaron 9 laboratorios.
- 2) Instituto de Medioambiente de Finlandia en la que participaron 34 laboratorios, que suministró 2 muestras (G1, G2) a cada participante, acompañadas de un documento donde se indicaba que G1 era de baja actividad ($<1000 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) y G2 era de alta actividad ($1000\text{-}5000 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$).
- 3) Departamento de Salud del Estado de Nueva York, febrero de 2016, organizada por Michael E.Kitto con la participación de 43 laboratorios.

Los resultados obtenidos con el Triathler 425-034 en la participación en los distintos ejercicios de intercomparación Nacional descritos anteriormente son los que pueden verse en la **Tab.11**, mientras que para los Internacionales quedan reflejados en la **Tab.12**.

Para valorar los resultados obtenidos en los ejercicios de intercomparación se aplican los criterios de calidad de **exactitud “S”** (Eq.31) y **precisión “E*”** (Eq.32).

$$S = \frac{|X_{lab} - X_{ref}|}{X_{ref}} \cdot 100 \quad (\text{Eq.31})$$

$$E^* = \frac{|X_{lab} - X_{ref}|}{2.58 \cdot \sqrt{U_{lab}^2 + U_{ref}^2}} \quad (\text{Eq.32})$$

Donde:

X_{lab} es el resultado del laboratorio participante.

X_{ref} es el resultado de referencia proporcionado por la organización.

U_{lab}^2 es la incertidumbre al cuadrado del laboratorio participante.

U_{ref}^2 es la incertidumbre al cuadrado proporcionada por la organización.

Los criterios a aplicar para conocer si los valores obtenidos para “S” y “E*” una vez aplicadas las **Eq.31 y 32** a los valores de las **Tab.11 y 12** cumplen satisfactoriamente son los que aparecen en la **Tab.10**:

Tab.10: Criterios de validación para exactitud “S” y para precisión “E*”.

Parámetro	Criterio	
Exactitud “S”	1 - 10 L.D.	$S \leq 25 \%$
	10 - 100 L.D.	$S \leq 30 \%$
Precisión “E*”	$E^* < 1$	

Tab.11: Resultados de los viales en Bq·l⁻¹ de las Intercomparaciones Nacionales.

	Rovira i Virgili	LaRUC- Iproma 2015	LaRUC- Iproma 2016
Valor Referencia	199 ± 15	507 ± 25	112 ± 4
Valor LaRUC Triathler	169 ± 21	487 ± 53	121 ± 18
Exactitud "S" (%)	15.1	3.9	8.0
Precisión "E*"	0.5	0.1	0.2

Tab.12: Resultados de los viales en Bq·l⁻¹ de las Intercomparaciones Internacionales.

	Irlanda	Finlandia		M.Kitto
		G1	G2	
Valor Referencia	607± 9	296 ± 44	2087± 209	270 ± 68
Valor LaRUC Triathler	569 ± 59	308 ± 34	2100 ± 205	280 ± 40
Exactitud "S" (%)	6.3	4.1	0.6	3.7
Precisión "E*"	0.2	0.1	0.0	0.0

Tal como pueden apreciarse los resultados obtenidos por LaRUC frente a los valores de referencia de las intercomparaciones tanto nacional como internacional (**Tab.11 y 12**) son satisfactorios en cuanto a criterios de calidad como la exactitud y la precisión que se encuentran establecidos dentro de nuestra acreditación ENAC de ISO 17025, lo que implica que la calibración del equipo Triathler 425-034 ha sido correctamente realizada.

5.2 Control de calidad de la técnica de espectrometría gamma

La calibración del equipo de Germanio para la medida de ²²²Rn en agua se desarrolló en dos pasos diferenciados:

- i) Calibración en energías.
- ii) Calibración en eficiencia.

5.2.1 Calibración en energías

La identificación cualitativa de un radionúclido en un espectro gamma se realiza principalmente mediante la determinación de la energía del fotopico, para ello, resulta necesario previamente establecer la relación entre el canal del espectro y la energía de emisión del radionúclido mediante la calibración en energías.

Para la calibración efectuada en este equipo, se emplearon varias fuentes indicadas en la **Tab.13** que cubrían todo el margen de energías deseadas para asignar la distribución de radionúclidos dentro de los 8192 canales que presenta el espectro de trabajo.

Tab.13: Radionúclidos utilizados para calibración en energías en espectrometría gamma (30-3000 keV).

Radionúclido	Periodo de semidesintegración	Energía (keV)
^{226}Ra	1600 años	Entre 186-1760
^{60}Co	5.27 años	1173-1332
^{137}Cs	30.07 años	661
^{241}Am	432.2 años	59.5
^{210}Pb	22.3 años	46.5
^{234}Th	24.1 días	63.3-92.4
^{232}Th	$1.41 \cdot 10^{10}$ años	63.8-140.8

Tras la asignación de canales a las distintas energías conocidas de las muestras introducidas para la calibración, el software del equipo calcula la recta de calibración en energías que es la que aparece representada en la **Fig.36**, cuya ecuación es la descrita en la **Eq.33**.

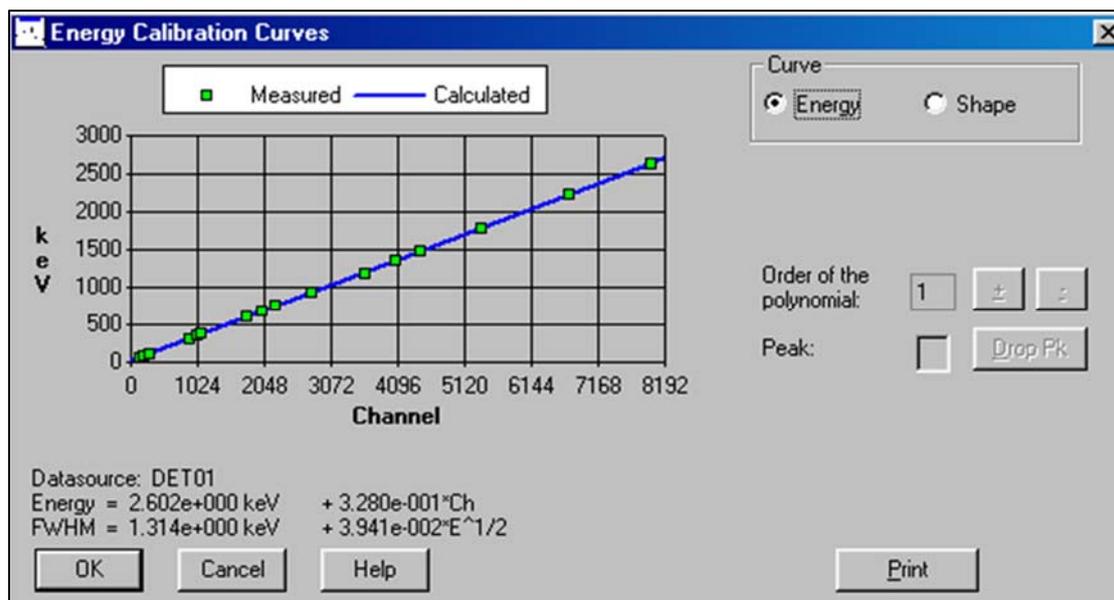


Fig.36: Curva de calibración en energías con el software Genie 2000 (Canberra).

$$\text{Energía (keV)} = 2.602 + 0.328 * \text{Canal} \quad (\text{Eq.33})$$

5.2.2 Calibración en eficiencia

Para la calibración en eficiencia del Germanio en la medida de ^{222}Rn en agua, resultó necesario la preparación de muestras calibradas de ^{226}Ra en agua. Para ello, partiendo de la disolución madre de $4.9 \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ que se preparó inicialmente en el proceso de calibración del Triathler y siguiendo un proceso similar, se prepararon las siguientes calibradas:

- a) Calibrada A, con actividad $589 \pm 18 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.
- b) Calibrada B, con actividad $273 \pm 8 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.
- c) Calibrada C, con actividad $126 \pm 4 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.
- d) Calibrada D, con actividad $58 \pm 2 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.
- e) Calibrada E, con actividad $27 \pm 1 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.
- f) Calibrada F, con actividad $12 \pm 1 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.

Las muestras calibradas fueron introducidas en botes de 250 ml de geometría cilíndrica, $\varnothing=8 \text{ cm}$ y $L=6.5 \text{ cm}$, rellenos completamente sin dejar burbujas de aire. Tras 40 días en reposo [KIT10] para dar tiempo necesario a alcanzar el equilibrio secular entre el ^{226}Ra , ^{222}Rn y descendientes, se procedió a su medida.

Con los resultados obtenidos por el equipo para cada muestra calibrada medida, se aplicó la **Eq.34**, para el cálculo de la eficiencia. Los resultados que se obtuvieron pueden verse en la **Tab.14**:

$$E_f = \frac{(N-f \cdot t)}{m \cdot t \cdot PE \cdot A} \quad (\text{Eq.34})$$

Donde:

E_f es la eficiencia.

N son las cuentas del radionúclido en la energía E .

f es el valor del Fondo para esa energía en cps.

t es el tiempo de conteo en segundos.

m es la masa en kg.

PE es la proporción de emisión del radionúclido correspondiente.

A es la actividad en $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ de la muestra calibrada.

Tab.14: Resultados de Eficiencia para calibradas de ^{222}Rn medidas a 3600s.

Calibrada	Actividad ($\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$)	Masa (kg)	Eficiencia (%)
Calibrada A	589 ± 18	0.267	1.30
Calibrada B	273 ± 8	0.268	1.30
Calibrada C	126 ± 4	0.269	1.30
Calibrada D	58 ± 2	0.269	1.30
Calibrada E	27 ± 1	0.272	1.30
Calibrada F	12 ± 1	0.271	1.30

Una vez se dispone del valor de la eficiencia, es el momento de participar en distintos ejercicios de intercomparación además de comparar los resultados de este equipo con el Triathler que es el equipo de referencia en este estudio. La seguridad que da el espectrómetro de Germanio de nuestro grupo de trabajo, es que se trata de un equipo que se encuentra integrado dentro del ensayo “Determinación de Radionucleidos por Espectrometría Gamma” acreditado por ENAC 17025.

5.2.3 Intercomparación con Triathler 425-034

Una vez calibrados los dos equipos de medida de ^{222}Rn en agua de uso habitual en cualquier laboratorio especializado en la materia, el siguiente objetivo antes de participar en ejercicios de intercomparación fue la toma de muestras de agua de nuestras fuentes de ^{222}Rn (comentado detalladamente en el 4.2) así como de cualquier otra muestra de agua que permitiera tener un amplio rango de actividades donde poder comparar los resultados obtenidos por ambos equipos.

En la **Tab.15** se observan los resultados obtenidos para las mismas muestras de distintas actividades por ambos equipos:

Tab.15: Resultados del Triathler frente a Germanio.

Triathler ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$)		Germanio ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$)	
Resultado	Incertidumbre	Resultado	Incertidumbre
479	52	521	41
341	39	397	25
380	42	418	34
628	67	668	49
451	49	512	39
2721	272	3174	201
564	60	628	46
2024	204	2279	142
417	46	455	28
1470	150	1627	99
2649	265	3040	190
2179	91	2550	160
121	9	128	9
562	60	648	40
2179	91	2550	160

El siguiente paso consistió en representar los valores obtenidos para las muestras en los dos equipos, de forma que en el eje x se representaron los valores en Bq·l⁻¹ obtenidos en el Triathler frente a los obtenidos en el Germanio que se representaron en el eje y, tal como puede apreciarse en la **Fig.37**. Para establecer una relación entre ambos, se realizó un ajuste lineal (línea roja) obteniéndose la **Eq.35** con un R-square de 0.99995.

$$\text{Germanio (Bq} \cdot \text{l}^{-1}\text{)} = 1.15083 \cdot \text{Triathler (Bq} \cdot \text{l}^{-1}\text{)} \quad (\text{Eq.35})$$

La **Fig.37** muestra la representación gráfica de los valores de la **Tab.15** junto con el ajuste lineal que aparece en la **Eq.35**.

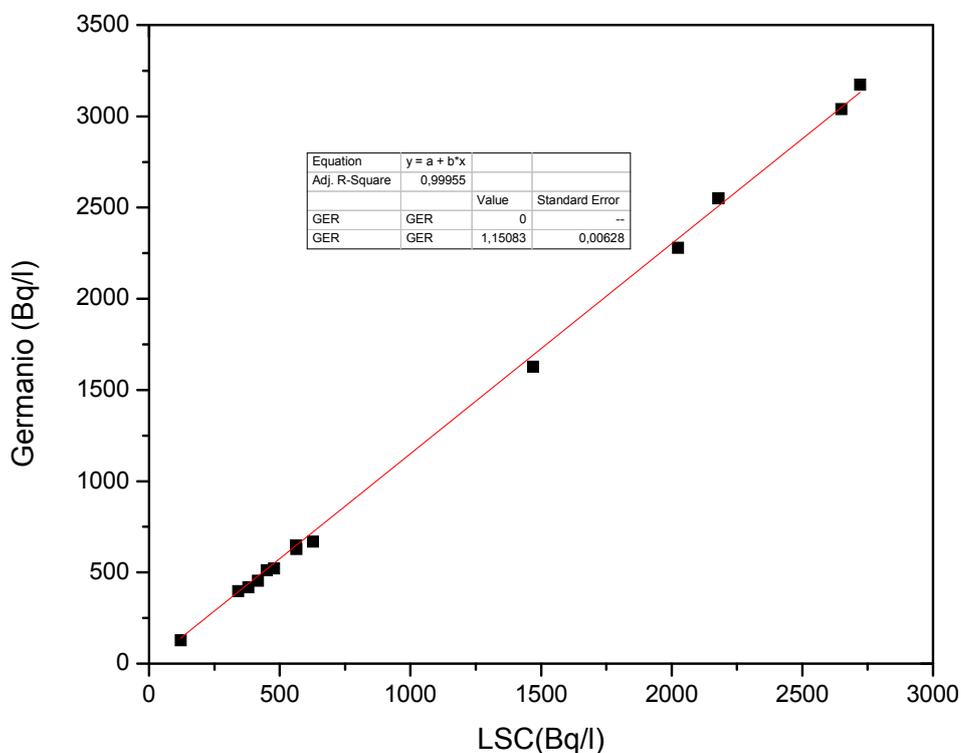


Fig.37: Representación de los valores obtenidos en el Triathler frente a Germanio.

5.2.4 Ejercicios de intercomparación

Para terminar de validar los resultados obtenidos con esta técnica de medida de ²²²Rn en agua tras la calibración en energías y eficiencia, se participa de forma continua en distintos ejercicios de intercomparación. En este periodo de tiempo, se han

participado en los 2 ejercicios organizados por nuestro grupo de trabajo junto a la empresa IPROMA S.L. que han tenido lugar a finales de 2015 y 2016 respectivamente. Los resultados obtenidos en estos ejercicios se pueden apreciar en la **Tab.16**, donde además de las medidas obtenidas por el equipo aparecen los resultados proporcionados por la organización como valor de referencia así como los valores de **exactitud “S” (Eq.31)** y **precisión “E*” (Eq.32)** obtenidos.

De acuerdo a los criterios establecidos en la **Tab.10** que refleja los criterios de calidad establecidos en nuestra acreditación ENAC para ISO 17025, los resultados de “S” y “E*” determinan que los resultados de las intercomparaciones son satisfactorios y el equipo de espectrometría gamma HPGe(Li) se encuentra correctamente calibrado.

Tab.16: Resultados en $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ en las Intercomparaciones participadas con el Germanio y Triathler.

Ejercicios de intercomparación	LaRUC-Iproma 2015	LaRUC-Iproma 2016
Valor Referencia	507 ± 25	112 ± 4
Valor LaRUC Germanio	540 ± 40	128 ± 9
Exactitud “S”	6.5	14.3
Precisión “E*”	0.3	0.6

5.3 Calibración del KIT de medida de ^{222}Rn en agua del RTM 2100

5.3.1 Calibración respecto al Triathler 425-034

La calibración de este equipo para su uso en el estudio del acuífero simulado desarrollado en el laboratorio se ha realizado respecto al Triathler. Para ello se puso en funcionamiento el equipo según el desarrollo experimental que se detalló en el pasado capítulo 4.3, de forma que se fueron tomando muestras de agua que se medían con el Triathler registrando al mismo tiempo las lecturas que proporcionaba el RTM. En la **Tab.17** se pueden ver la relación de datos que se obtuvieron en las distintas tomas de muestras que se hicieron.

Tab.17: Relación de valores entre RTM y LSC.

RTM (Bq·m ⁻³)	LSC (Bq·l ⁻¹)	RTM (Bq·m ⁻³)	LSC (Bq·l ⁻¹)
3682	0	2.40·10 ⁶	467
49400	25	2.40·10 ⁶	479
133355	42	2.45·10 ⁶	484
531352	108	2.43·10 ⁶	480
714883	150	2.46·10 ⁶	495
1.06·10 ⁶	199	2.52·10 ⁶	487
1.15·10 ⁶	217	2.37·10 ⁶	448
1.40·10 ⁶	272	2.51·10 ⁶	479
1.95·10 ⁶	404	2.13·10 ⁶	400
1.97·10 ⁶	413	2.52·10 ⁶	452
2.06·10 ⁶	417	1.96·10 ⁶	380
2.09·10 ⁶	426	2.13·10 ⁶	432
2.23·10 ⁶	460	2.08·10 ⁶	439
2.32·10 ⁶	446	3.55·10 ⁶	732

Representando estos valores se obtiene la **Fig.38** donde tras aplicar un ajuste lineal se obtiene la relación entre las lecturas del RTM y el Triathler.

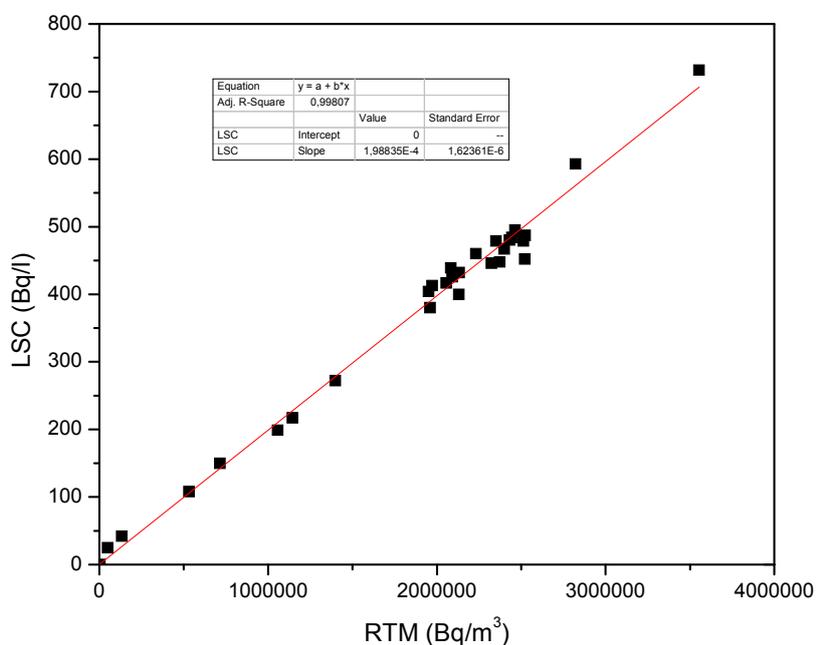


Fig.38: Representación de la relación entre RTM y LSC.

A partir del ajuste lineal aplicado a la **Fig.38** en línea de color rojo se obtiene la **Eq.36**, donde el factor t_f (pendiente que se obtiene del ajuste lineal) convierte las lecturas del RTM expresadas en Bq·m⁻³ a Bq·l⁻¹.

$$C_{Rn}(LSC) = t_f \cdot C_{Rn}(RTM) \Rightarrow t_f = (1.98 \pm 0.01) \cdot 10^{-4} \frac{Bq \cdot l^{-1}}{Bq \cdot m^{-3}} \quad (\text{Eq.36})$$

Esta calibración del RTM permitirá posteriormente, en el tratamiento de los datos obtenidos con el desarrollo experimental del acuífero en el laboratorio, transformar los datos registrados en continuo de ^{222}Rn en aire con el RTM a valores de ^{222}Rn en agua en $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.

5.3.2 Calibración respecto al espectrómetro gamma HPGe(Li)

De la misma forma que se ha comentado con detalle la calibración del KIT de ^{222}Rn en agua del RTM 2100 a través del Triathler, a continuación se comenta la calibración del KIT que se llevó a cabo con el Germanio antes de disponer en nuestras instalaciones del Triathler, y que se utilizó en el estudio real del Balneario de Las Caldas de Besaya que se abordará en el capítulo 6.2.2 y que tuvo lugar con anterioridad al estudio del acuífero simulado en el laboratorio.

En la **Tab.18** se muestran los valores de ^{222}Rn en agua obtenidos para las muestras recogidas en el Balneario de Las Caldas junto con los valores registrados por el RTM en los instantes que se tomaron las muestras de agua. Para completar la verificación se realizaron a nivel de laboratorio 2 experiencias que son las dos últimas que aparecen en la **Tab.18**.

Tab.18: Relación de valores entre RTM y Germanio.

RTM ($\text{MBq} \cdot \text{m}^{-3}$)	Germanio ($\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$)
3.62	766
3.22	566
3.29	539
3.87	850
2.07	406
1.30	255
0.2	67
0.1	12

Representando los valores de la **Tab.18** se obtiene la **Fig.39** donde tras aplicar un ajuste lineal se obtiene la relación entre las lecturas del RTM y el Germanio.

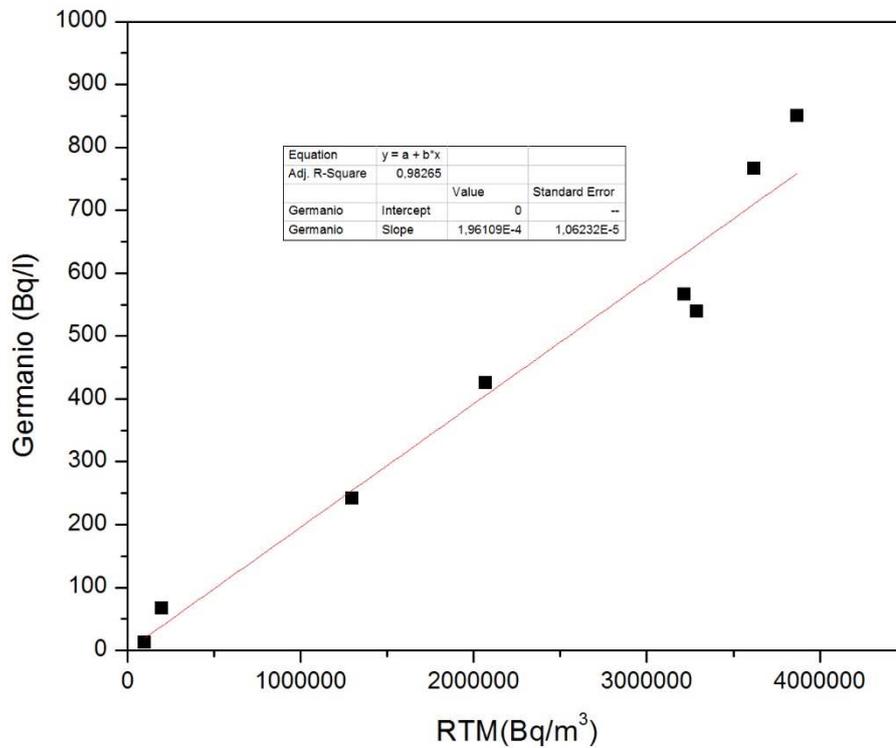


Fig.39: Representación de la relación entre RTM y Germanio.

De acuerdo al ajuste lineal (línea roja) realizado a los datos representados en la **Fig.39** se obtiene la **Eq.37**, donde el factor t_{fG} (pendiente que se obtiene del ajuste lineal) convierte las lecturas del RTM expresadas en $Bq \cdot m^{-3}$ a $Bq \cdot l^{-1}$.

$$C_{Rn}(Germanio) = t_{fG} \cdot C_{Rn}(RTM) \Rightarrow t_{fG} = (1.96 \pm 0.10) \cdot 10^{-4} \frac{Bq \cdot l^{-1}}{Bq \cdot m^{-3}} \quad (Eq.37)$$

Esta calibración del KIT de ^{222}Rn en agua del RTM 2100 respecto al espectrómetro gamma HPGe(Li) permitirá posteriormente, en el tratamiento de los datos obtenidos en el estudio del Balneario de Las Caldas de Besaya, transformar los datos registrados en continuo de ^{222}Rn en aire por el RTM a valores de ^{222}Rn en agua en $Bq \cdot l^{-1}$.

5.4 Calibración del Radon scout

La calibración de estos equipos se realiza en fábrica, pero todos los equipos se verifican periódicamente en la cámara de radón (**Fig.40**) disponible en las instalaciones de LaRUC, en la cual pueden ser sometidos a concentraciones conocidas de radón. Dicha cámara consiste en un recipiente cúbico de 1 x 1 x 1 m (1m³) de volumen, situado en la Facultad de Medicina de la Universidad de Cantabria. Las paredes de la cámara están construidas con planchas de acero inoxidable de 1.5 mm de grosor soldadas entre sí para garantizar su hermeticidad. La plancha superior actúa como tapa que puede retirarse para la introducción y extracción de equipos y fuentes.

La cámara está preparada para la exposición simultánea de diversos sistemas de detección de radón, y dispone de conexiones eléctricas con el exterior para alimentar aquellos equipos que así lo precisen. Igualmente, cuenta con válvulas de intercambio gaseoso con el aire exterior que permiten modificar la concentración de radón en función de los niveles de exposición que se desee. La homogeneidad de la concentración de radón en el interior se consigue con el uso de un pequeño ventilador, garantizando que las diferencias de concentración dentro de la cámara sean inferiores al 3%. La hermeticidad del conjunto se garantiza con el sellado de los cierres usando materiales de bajo coeficiente de difusión para el gas radón, consiguiéndose una tasa de intercambio con el exterior menor de 0.01 h⁻¹.



Fig.40: Cámara empleada para verificaciones de ²²²Rn en aire.

En el interior de la cámara (**Fig.41**), se colocan los Radon scouts además de otros equipos que sirven de referencia para la verificación como es el ATMOS 12 que se encuentra calibrado en un laboratorio de referencia europeo (The National Metrology Institute of Germany).



Fig.41: Interior de la cámara de Rn con fuentes de ^{226}Ra , ventilador y equipos de medida.

El ATMOS 12 se utiliza en el interior de la cámara con el objetivo de controlar en continuo las concentraciones de ^{222}Rn que se alcanzan en su interior mediante el uso de tierra con altos contenidos en ^{226}Ra ($700 \text{ kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$) y un poder de exhalación que va aumentando la concentración de ^{222}Rn en aire hasta el valor deseado, pudiendo comparar los resultados que muestran los equipos a verificar con respecto al equipo de referencia.

En este caso, como se puede apreciar en la **Fig.42**, el Radon scout utilizado en este estudio presentan un comportamiento muy similar al equipo de referencia ATMOS 12 desde el instante $t=0$ h que la concentración de ^{222}Rn en aire comienza a crecer hasta $4500 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ que se alcanzan a las 50 horas de exposición de los equipos.

A pesar de que gráficamente se puede indicar que la calibración del Radon scout 1138 realizada en fábrica es correcta al presentar valores gráficos visualmente similares respecto al equipo de referencia, resulta necesario comprobar matemáticamente que la lectura que presenta el equipo con respecto al ATMOS 12 no es significativamente distinta y que el equipo puede emplearse en este estudio con la seguridad de que mide bien. Como resultado de aplicar el análisis estadístico t-Student a los registros

proporcionados por el Radon scout 1138 y el ATMOS 12 se obtiene un p-valor de 0.37, que confirma que las lecturas de ambos equipos no son significativamente distintas con una probabilidad del 95%, lo que permite emplear con seguridad el Radon scout en este estudio.

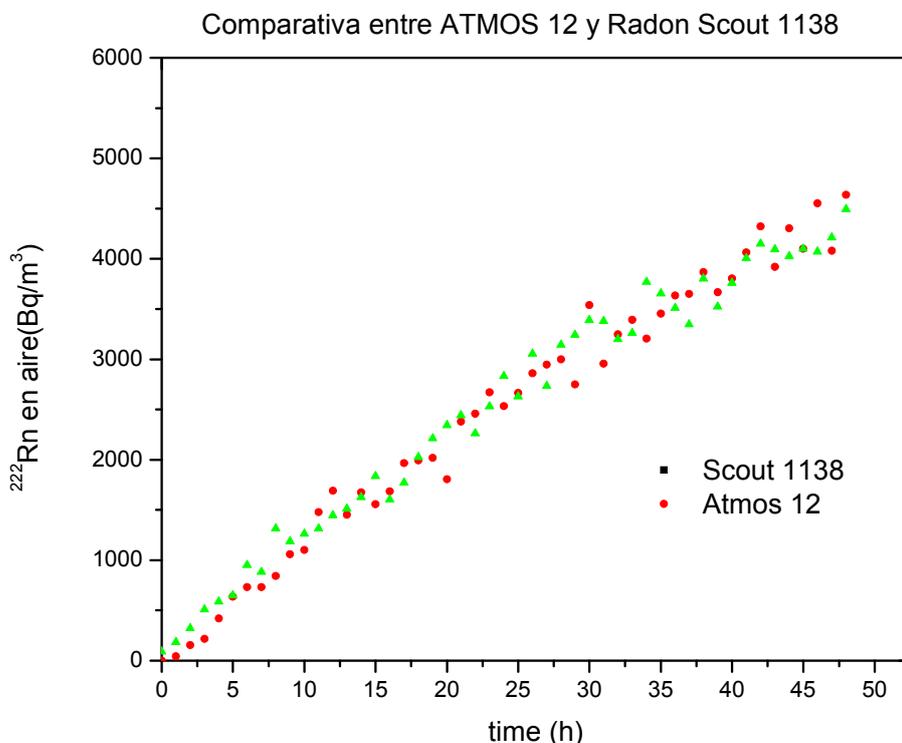


Fig.42: Representación de los valores de ^{222}Rn en aire marcados en el interior de la cámara por el Radon scout 1138 y el ATMOS 12.

5.5 Calibración del RAD7 radon detector

El mismo procedimiento empleado para la verificación del Radon scout se aplica con el RAD7. Para ello, se prepara nuevamente una cámara donde se introducen el equipo de referencia, ATMOS 12, junto a tierras con alto poder de exhalación y se controla en continuo la concentración de ^{222}Rn que se alcanza en su interior, con el objetivo de comprobar que las mediciones de ambos equipos son similares.

La representación gráfica de los valores proporcionados por el RAD7 y por el equipo de referencia ATMOS 12 pueden verse en la **Fig.43**, donde se aprecia visualmente que los valores proporcionados por ambos equipos son bastante similares

desde el instante $t=0$ h hasta $t=120$ h, momento en el que se alcanzan las mayores concentraciones entorno a $1000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$.

Para determinar matemáticamente que los equipos están verificados, resulta necesario aplicar un estudio estadístico a las parejas de valores proporcionadas por ambos equipos para afirmar que no son significativamente distintos con un 95% de confianza. La aplicación del análisis t-Student a los valores representados en la **Fig.43** dan como resultado un p-valor de 0.11 que confirma que el equipo RAD7 está perfectamente calibrado para utilizarlo en este estudio.

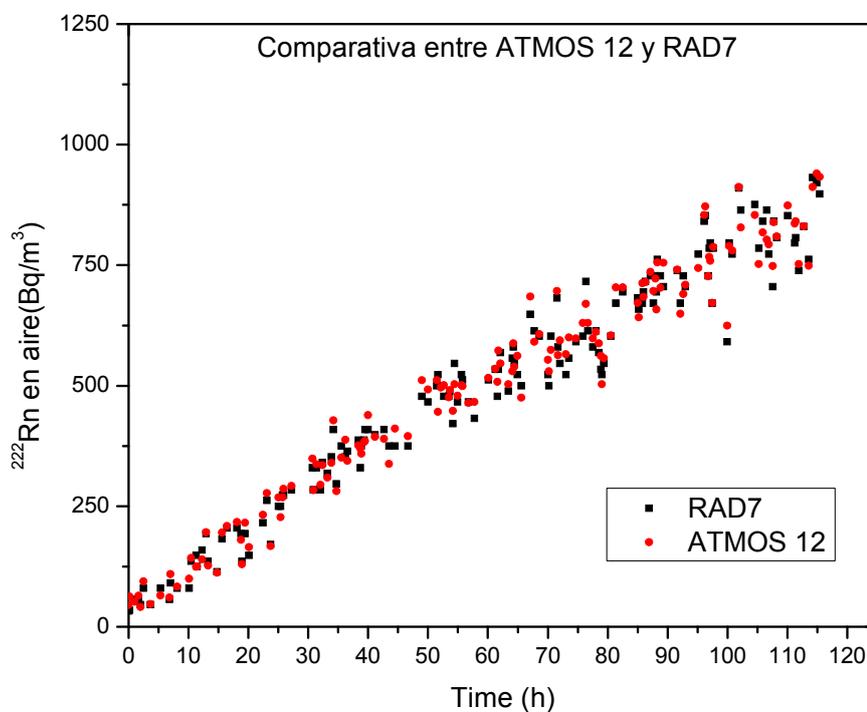


Fig.43: Representación de los valores de ^{222}Rn en aire marcados en el interior de la cámara por los RAD7 y el ATMOS 12.

CAPÍTULO

6 Modelos matemáticos y diseño de experimentos

6.1 Modelos matemáticos

6.1.1 Modelo de Compartimento Cerrado: (MCC)

6.1.2 Modelo de Compartimento Abierto: (MCA)

6.2 Diseño de experimentos

6.2.1 Diseño de experimentos en el acuífero simulado

6.2.2 Diseño del estudio del caso real

En la primera parte del **Capítulo** se procede a la descripción teórica de los modelos matemáticos que se aplican posteriormente en los dos casos experimentales analizados en este estudio:

- i) El acuífero simulado construido en el laboratorio.
- ii) El caso real del Balneario de Las Caldas de Besaya (Cantabria).

La segunda parte del **Capítulo** se dedica a la descripción de los experimentos diseñados para el estudio del comportamiento respecto al ^{222}Rn que experimentan los dos acuíferos estudiados durante sus habituales procesos de recarga, descarga y reposo.

6.1 Modelos matemáticos

Estos modelos matemáticos intentan explicar las variaciones que experimenta la concentración de ^{222}Rn de un acuífero durante sus procesos de recarga y descarga que tienen lugar de forma continuada durante su ciclo de vida frente a los tiempos de reposo donde no existen variaciones en sus volúmenes de agua. Dos son los modelos que se aplican para explicar estas dos posibles situaciones [SAI16]:

- a) **Modelo de Compartimento Cerrado: MCC.** Se aplica cuando no existen aportes de agua externos, es decir, el acuífero actúa como un sistema aislado del entorno.
- b) **Modelo de Compartimento Abierto: MCA.** Se aplica cuando existen aportes de agua externos, como son los procesos de recarga que experimentan los acuíferos.

6.1.1 Modelo de Compartimento Cerrado: MCC

Este modelo intenta explicar la variación que experimenta la concentración de ^{222}Rn con el tiempo cuando el acuífero no tiene aporte externo de agua, es decir, cuando está en reposo y mantiene su volumen constante. La ecuación diferencial que determina esta situación es la **Eq.38** [KOW10, NAZ88, SAI16]:

$$\frac{dC}{dt} = \phi - \lambda \cdot C \quad (\text{Eq.38})$$

Para entender los términos que aparecen en esta **Eq.38**, se deben ver las **Eq.39** y **40**:

$$\phi = \frac{E \cdot S}{V} \quad (\text{Eq.39})$$

$$\lambda = \lambda_{222\text{Rn}} + \lambda_v \quad (\text{Eq.40})$$

Donde:

- i) C es la concentración de ^{222}Rn en el agua ($\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$) en un instante t.
- ii) C_0 es la concentración de ^{222}Rn en el instante $t=0$ ($\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$).
- iii) t es el tiempo (h).
- iv) ϕ es la tasa de emisión de radón ($\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$).
- v) E es la exhalación de ^{222}Rn que presenta la fuente empleada en el acuífero ($\text{Bq} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$).
- vi) S es la superficie de exhalación de la fuente (m^2).
- vii) V es el volumen de agua (l).
- viii) $\lambda_{222\text{Rn}}$ es la constante de desintegración del ^{222}Rn (h^{-1}).
- ix) λ_v es la constante que refleja la pérdida de radón en la interfase agua-aire por unidad de tiempo (h^{-1}).
- x) λ es la constante que tiene en cuenta a $\lambda_{222\text{Rn}}$ y a λ_v (h^{-1}).

La ecuación diferencial que se emplea en los modelos MCC y MCA (**Eq.38**) tiene la forma de la **Eq.41**:

$$\frac{dC}{dt} = a - b \cdot C \quad (\text{Eq.41})$$

Se trata de una ecuación diferencial lineal de primer orden, que se procede a resolver aplicando el método de variación de constantes:

1) Se resuelve la ecuación homogénea:

$$\frac{dC}{dt} = -b \cdot C \rightarrow \frac{dC}{C} = -b \cdot dt \rightarrow C_{hom} = q \cdot e^{-b \cdot t}; q \equiv cte \quad (\text{Eq.42})$$

2) Se sustituye el resultado en la ecuación inicial:

$$\frac{d(q \cdot e^{-b \cdot t})}{dt} = a - b \cdot q \cdot e^{-b \cdot t} \rightarrow \frac{dq}{dt} (e^{-b \cdot t}) - \cancel{b \cdot q \cdot e^{-b \cdot t}} = a - \cancel{b \cdot q \cdot e^{-b \cdot t}} \quad (\text{Eq.43})$$

$$\frac{dq}{dt} (e^{-b \cdot t}) = a \rightarrow dq = a \cdot e^{+b \cdot t} \cdot dt \rightarrow \boxed{q = \frac{a}{b} \cdot e^{+b \cdot t} + q_2} \quad (\text{Eq.44})$$

$$C = \left(\frac{a}{b} \cdot e^{+b \cdot t} + q_2 \right) \cdot e^{-b \cdot t} = \frac{a}{b} + q_2 \cdot e^{-b \cdot t} \quad (\text{Eq.45})$$

Con la condición inicial: $C(t = 0) = C_o = \frac{a}{b} + q_2 \rightarrow \boxed{q_2 = C_o - \frac{a}{b}}$ (Eq.46)

3) El resultado de la resolución es:

$$C = \frac{a}{b} + \left(C_o - \frac{a}{b} \right) \cdot e^{-b \cdot t} \rightarrow \boxed{C = C_o \cdot e^{-b \cdot t} + \frac{a}{b} \cdot (1 - e^{-b \cdot t})} \quad (\text{Eq.47})$$

Una vez resuelta la ecuación diferencial (**Eq.38**) se alcanza la Eq.48:

$$C(t) = C_o \cdot e^{-\lambda \cdot t} + \frac{\phi}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t}) \quad (\text{Eq.48})$$

Esta **Eq.48** permite conocer la concentración de ^{222}Rn en el agua del acuífero en un instante “t”, de forma, que aplicando la condición matemática de máximo se puede conocer la concentración máxima que se alcanzaría con el transcurso del tiempo cuando se alcance el equilibrio, **Eq.49**.

$$\text{Condición de máximo: } \frac{dC}{dt} = 0 \quad \Rightarrow \quad C_{\text{máx}} = \frac{\phi}{\lambda} \quad (\text{Eq.49})$$

En la **Fig.44**, se presenta un esquema simplificado del modelo MCC, que anteriormente se ha visto descrito a través de las **Eq.38, 39, 40 y 48**. Esta figura representa un acuífero en el que no existe aporte externo de agua, y consecuentemente su volumen (V) permanece constante:

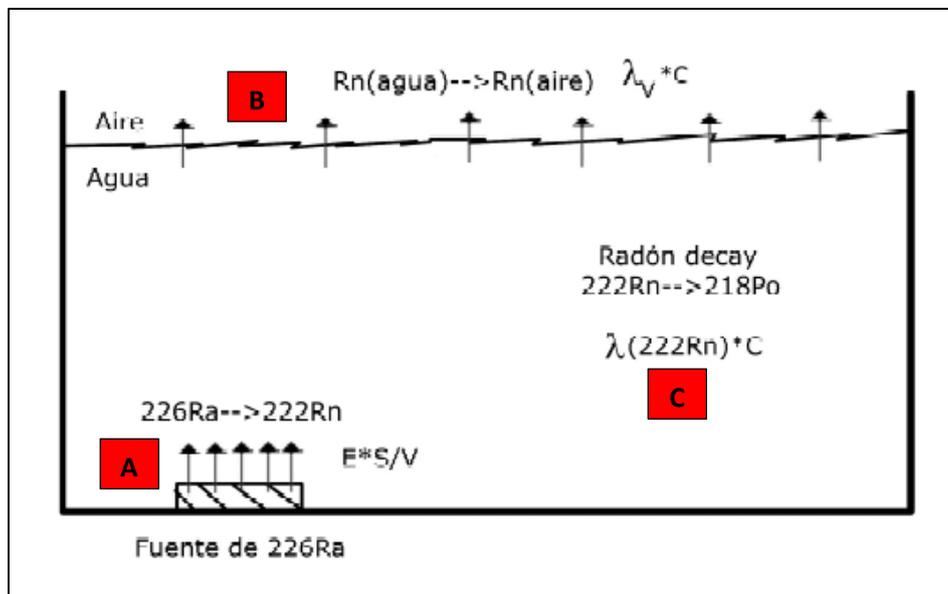


Fig.44: Esquema gráfico de la dinámica de concentración de ^{222}Rn según el MCC [SAI16].

- A) representa la fuente de ^{226}Ra del acuífero, que genera la exhalación de ^{222}Rn al agua. Su tasa de emisión de radón (ϕ , **Eq.39**) se caracteriza por la superficie de exhalación de la fuente (S), por el volumen del agua del acuífero (V) y por la exhalación de ^{222}Rn que presenta la propia fuente (E).
- B) hace referencia a la interfase entre el agua y el aire, y consecuentemente a las pérdidas de ^{222}Rn que experimenta el sistema por su transferencia al aire. Para la cuantificación de estas pérdidas se utiliza λ_v junto con la concentración de radón (C) en ese instante.

- C) la cuantificación de la disminución de ^{222}Rn que experimenta el agua como consecuencia de la desintegración del ^{222}Rn se estima utilizando la $\lambda_{^{222}\text{Rn}}$ junto con la concentración de radón (C) existente en ese instante.

En resumen, el Modelo de Compartimento Cerrado (MCC), se aplica para estudiar la dinámica que experimenta la concentración de ^{222}Rn en el agua de un acuífero, siempre y cuando no existan aportes externos de agua al sistema. Destacando que la concentración de ^{222}Rn en el sistema va aumentar por la tasa de emisión que aporta la fuente y va a disminuir tanto por la ley de desintegración radiactiva como por sus transferencias al aire.

6.1.2 Modelo de Compartimento Abierto: MCA

La necesidad de modelizar sistemas que tienen aportes de aguas externas con distinta concentración de ^{222}Rn que la contenida por el propio sistema, obliga a la adaptación del modelo anterior para dar lugar al conocido como Modelo de Compartimento Abierto, MCA.

Con respecto al modelo anterior, se pueden suponer las mismas condiciones añadiendo un término de intercambio. La ecuación diferencial que expresa este modelo matemático puede verse en la **Eq.50** [KOW10, NAZ88, SAI16]:

$$\frac{dC}{dt} = \phi - \lambda \cdot C - \lambda_I \cdot (C - C^*) \quad (\text{Eq.50})$$

La resolución de esta ecuación diferencial (**Eq.50**) da como resultado la **Eq.51** que determina la dinámica de la concentración de ^{222}Rn en un MCA:

$$C(t) = C_0 \cdot e^{-\lambda^* \cdot t} + \frac{d}{\lambda^*} \cdot (1 - e^{-\lambda^* \cdot t}) \quad (\text{Eq.51})$$

Para entender los términos que aparecen en esta **Eq.51**, resulta necesario ver las **Eq.52, 53 y 54**.

$$d = \phi + \lambda_I \cdot C^* \quad (\text{Eq.52})$$

$$\lambda^* = \lambda + \lambda_I \quad (\text{Eq.53})$$

$$\lambda_I = \frac{V_R}{V_A \cdot t_R} \quad (\text{Eq.54})$$

Donde:

- i) C es la concentración de ^{222}Rn en el agua ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) en un instante t .
- ii) C_0 es la concentración de ^{222}Rn antes del aporte de agua externo ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$).
- iii) t es el tiempo (h) y t_R tiempo que dura la recarga (h).
- iv) d es un término que suma la tasa de emisión de radón de la fuente que alimenta el acuífero ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}$) y la concentración de radón aportada por el agua externa multiplicada por la λ de intercambio de volumen.
- v) λ^* es una constante que resulta de sumar la λ calculada en el MCC (h^{-1}) y la λ_I del intercambio de volumen.
- vi) λ es la constante que refleja la pérdida de radón en la interfase agua-aire por unidad de tiempo (h^{-1}) calculada en el MCC.
- vii) λ_I es la constante que refleja el intercambio de volumen por unidad de tiempo (h^{-1}).
- viii) V_R es el volumen de recarga y V_A es el volumen del acuífero (l).

En la **Fig.45**, se presenta un esquema simplificado del modelo MCA, muy similar al visto para el MCC pero teniendo en cuenta el aporte de agua externa que puede producirse por aportaciones de agua de lluvia que presentan nulas concentraciones de ^{222}Rn o por descargas de aguas más profundas que habitualmente suelen presentar concentraciones de ^{222}Rn elevadas.

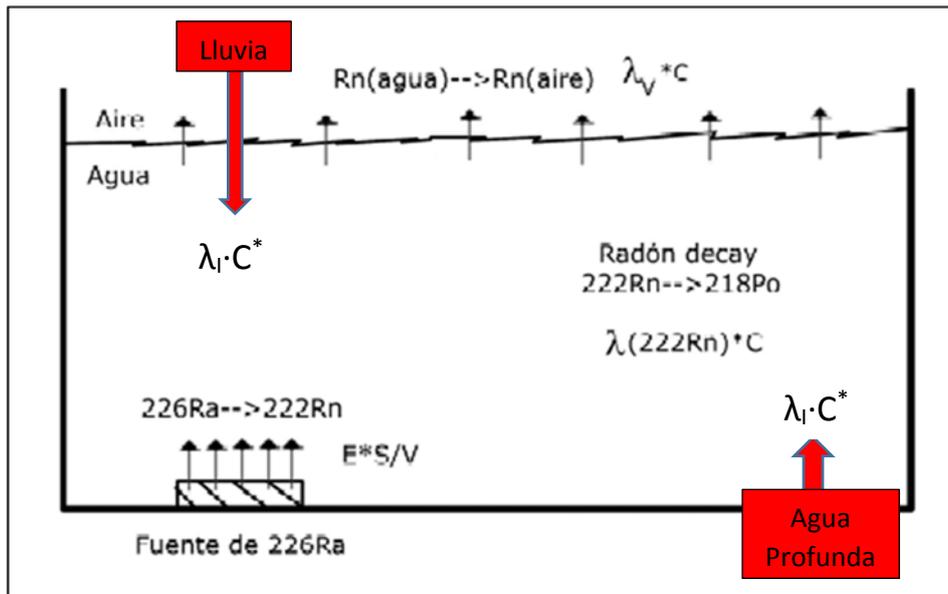


Fig.45: Esquema gráfico de la dinámica de concentración de ^{222}Rn según MCC.

6.2 Diseño de experimentos

En este apartado se describe el diseño de experimentos que se realizó para llevar a cabo el estudio de recargas y descargas tanto sobre el acuífero simulado como sobre el caso real del Balneario de Las Caldas de Besaya.

6.2.1 Diseño de experimentos en el acuífero simulado

En la **Fig.56** se pueden observar los 11 episodios diseñados que se repartieron en 3 experimentos diferenciados en función que la recarga y la descarga fueran rápidas o progresivas y que se describen a continuación.

Las descargas de agua, que simulaban la descarga que cualquier acuífero puede realizar a un río, al mar o a otro acuífero cercano se recogieron en un cubo por el grifo inferior del contenedor y fueron pesadas para registrar las cantidades retiradas. De igual forma, se pesó la cantidad de agua empleada en las recargas simulando el agua de lluvia cuando se empleaba agua libre de ^{222}Rn (agua del grifo) o simulando agua subterránea con concentraciones notables de ^{222}Rn cuando se empleaba agua enriquecida en la fuente de la nevera portátil.

1) Experimento 1: etapa de crecimiento inicial del acuífero simulado.

La experimentación con el acuífero simulado comenzó una vez construido y cargado con agua del grifo, el 7 de junio del 2016 a las 12:16 h. En ese instante, se conectó el RTM 2100 que comenzó la toma de registros del crecimiento de ^{222}Rn en el agua del acuífero. Tras el control diario de los datos proporcionados por el RTM, se creyó oportuno que el 18 de julio a las 10:41 h tras disponer de una gran cantidad de datos (cerca de 1000 horas), dar por alcanzado el equilibrio de ^{222}Rn . Este experimento corresponde al “**episodio 1**” que aparece en la **Fig.56**.

2) Experimento 2: descarga y recarga rápidas.

Los episodios 2, 3 y 4 que se realizaron en este **experimento 2** se caracterizan por tratarse de descargas y recargas con agua del grifo realizado con diferentes caudales y en distintos momentos, de forma que el volumen del acuífero no permaneció constante.

Episodio 2: descarga y recarga con agua del grifo (18/07/2016).

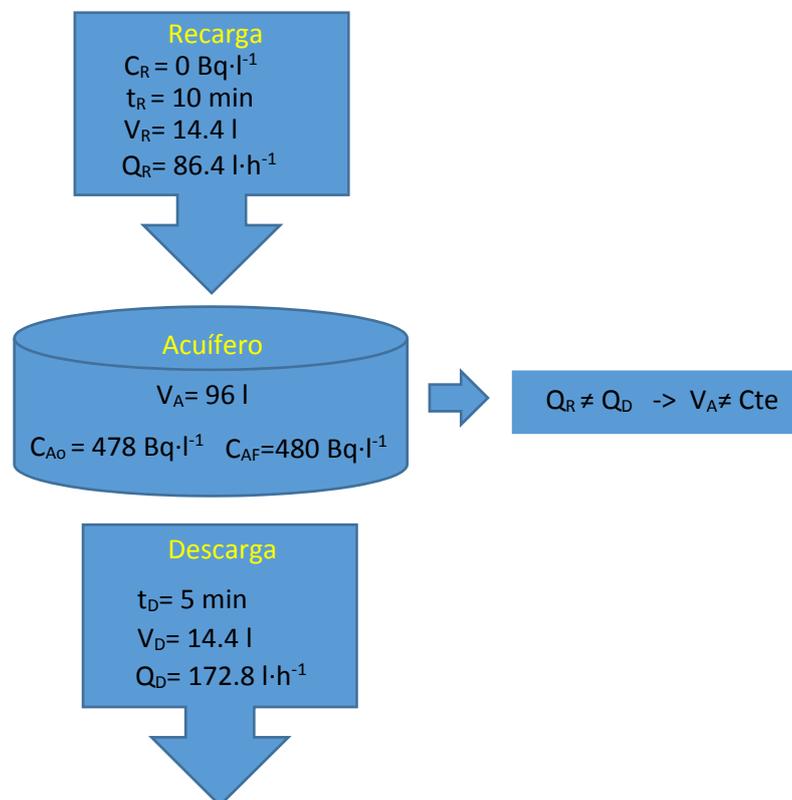


Fig.46: Esquema gráfico del episodio 2.

Donde:

C_R es concentración de ^{222}Rn del agua de recarga ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$).

C_{A0} es la concentración de ^{222}Rn en agua inicial del acuífero ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$).

C_{AF} es la concentración del acuífero tras estabilizarse después de la recarga ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$).

t_R es el tiempo que dura la recarga y t_D el tiempo de descarga (min).

V_R es el volumen de agua de la recarga y V_D el volumen de descarga (l).

Q_R es el caudal del agua de recarga y Q_D es el caudal de descarga ($\text{l}\cdot\text{h}^{-1}$).

Este episodio descrito por la **Fig.46**, corresponde al “**episodio 2**” que puede verse en la **Fig.56** que representa la variación de la concentración de ^{222}Rn en el acuífero simulado durante todo el estudio.

Episodio 3: descarga y recarga con agua del grifo (17/08/2016).

La **Fig.47** presenta toda la información de interés de este “**episodio 3**” donde se renueva el 33% del volumen del acuífero.

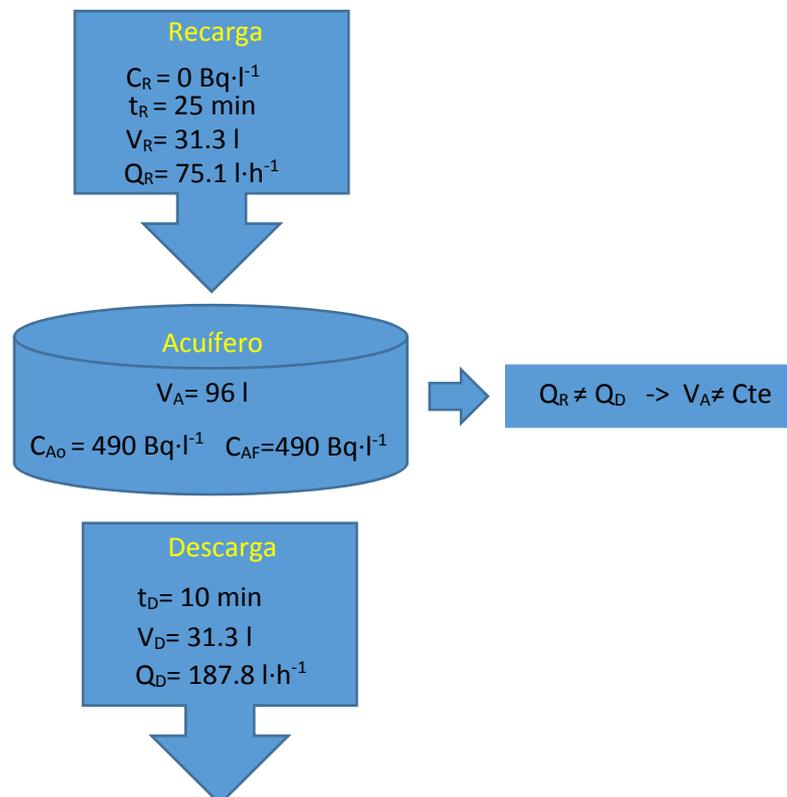


Fig.47: Esquema gráfico del episodio 3.

Episodio 4: descarga y recarga con agua del grifo (19/09/2016).

La **Fig.48** presenta toda la información de interés de este “**episodio 4**” donde se renueva el 52% del volumen del acuífero.

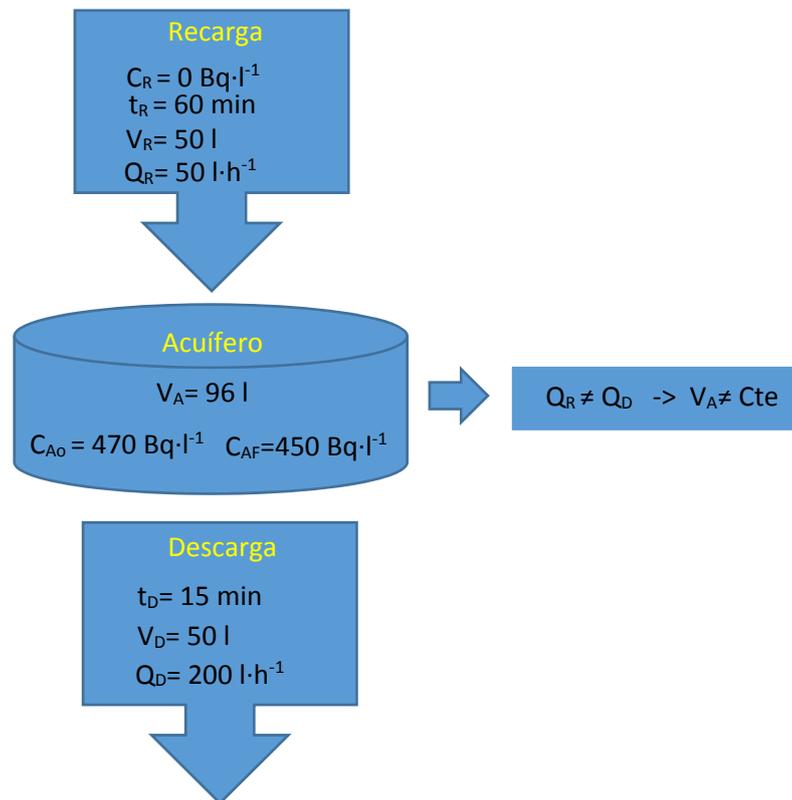


Fig.48: Esquema gráfico del episodio 4.

Los **episodios 5, 6 y 7** de este **experimento 3** se caracterizan por tratarse de descargas y recargas con agua rica en ^{222}Rn , realizadas con diferentes caudales y en distintos momentos, de forma que el volumen del acuífero no permaneció constante.

Episodio 5: descarga y recarga con agua rica en ^{222}Rn (11/10/2016).

La **Fig.49** presenta toda la información de interés de este “**episodio 5**” donde se renueva el 17.3% del volumen del acuífero empleando agua de la fuente de la nevera portátil.

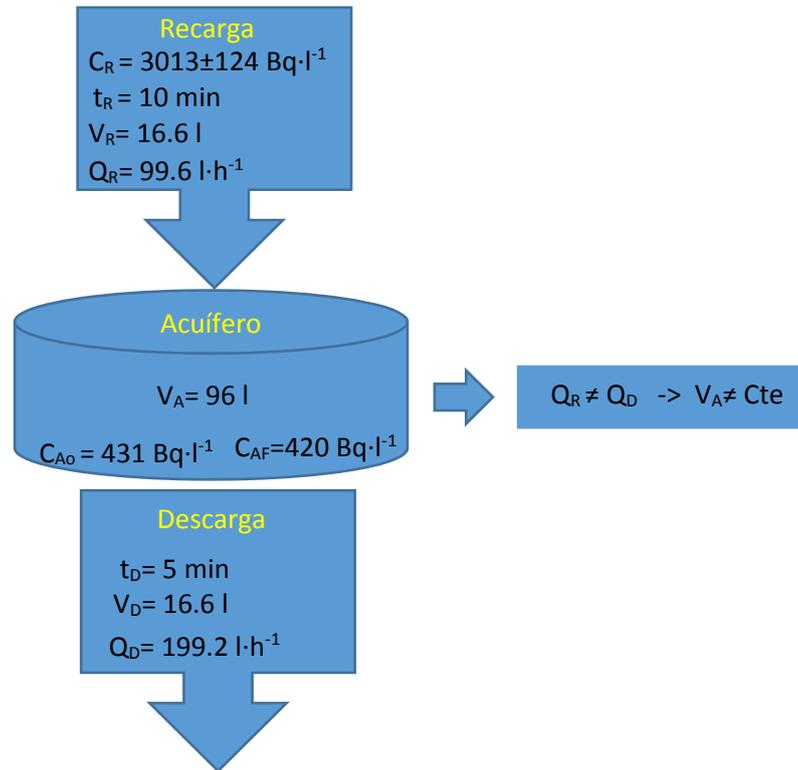


Fig.49: Esquema gráfico del episodio 5.

Episodio 6: descarga y recarga con agua rica en ^{222}Rn (25/10/2016).

La Fig.50 presenta toda la información de interés de este “episodio 6” donde se renueva el 17.3% del volumen del acuífero empleando agua de la fuente de la nevera.

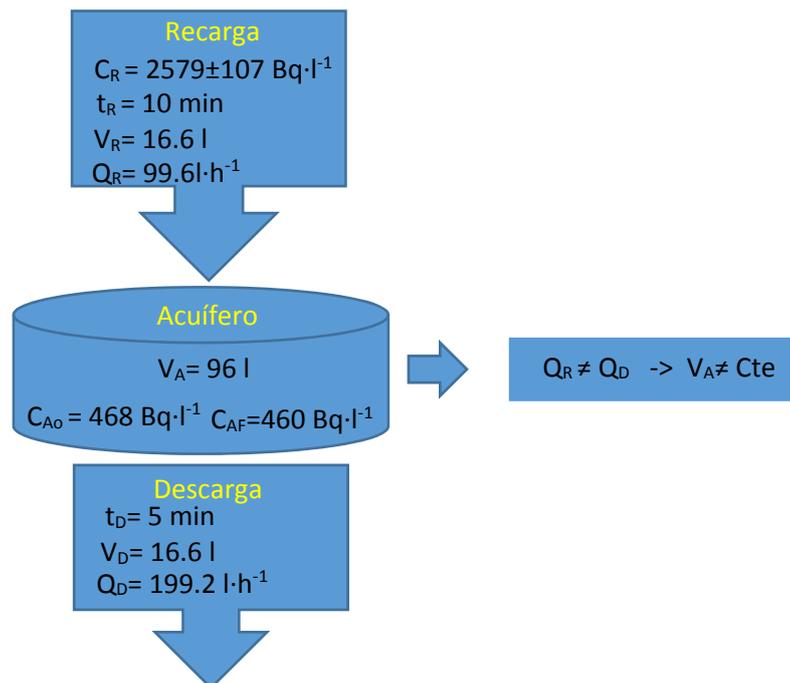


Fig.50: Esquema gráfico del episodio 6.

Episodio 7: descarga y recarga con agua rica en ^{222}Rn (21/12/2016).

La **Fig.51** presenta toda la información de interés de este “**episodio 7**” donde se renueva el 46% del volumen del acuífero empleando agua de la fuente de la nevera simulando la recarga con aguas subterráneas.

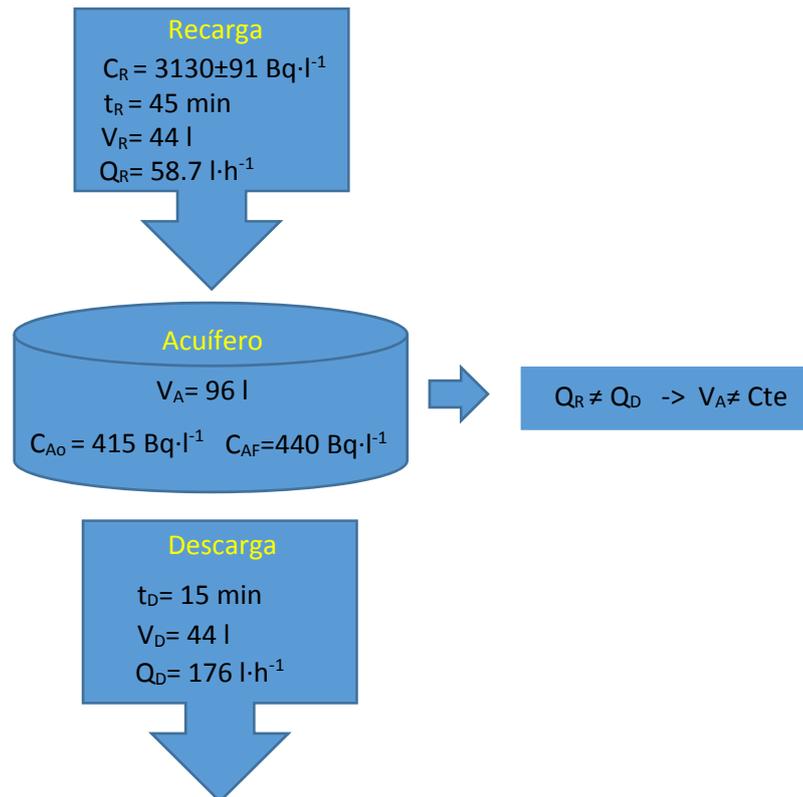


Fig.51: Esquema gráfico del episodio 7.

3) Experimento 3: descarga rápida y recarga progresiva.

Los **episodios 8 y 9** que se realizaron en este **experimento 3** se caracterizan por tratarse de descargas rápidas realizadas en tiempos cortos (10 min) frente a recargas realizadas con caudales muy pequeños en tiempos prolongados (5 horas) logradas con aperturas parciales del grifo, de forma que el volumen del acuífero no permaneció constante ni durante la simulación realizada con agua del grifo ni durante la realizada con agua enriquecida con ^{222}Rn de la fuente de la nevera portátil.

Episodio 8: descarga rápida y recarga progresiva con agua del grifo (28/08/2017).

La Fig.52 presenta toda la información de interés de este “episodio 8” donde se renueva el 25% del volumen del acuífero.

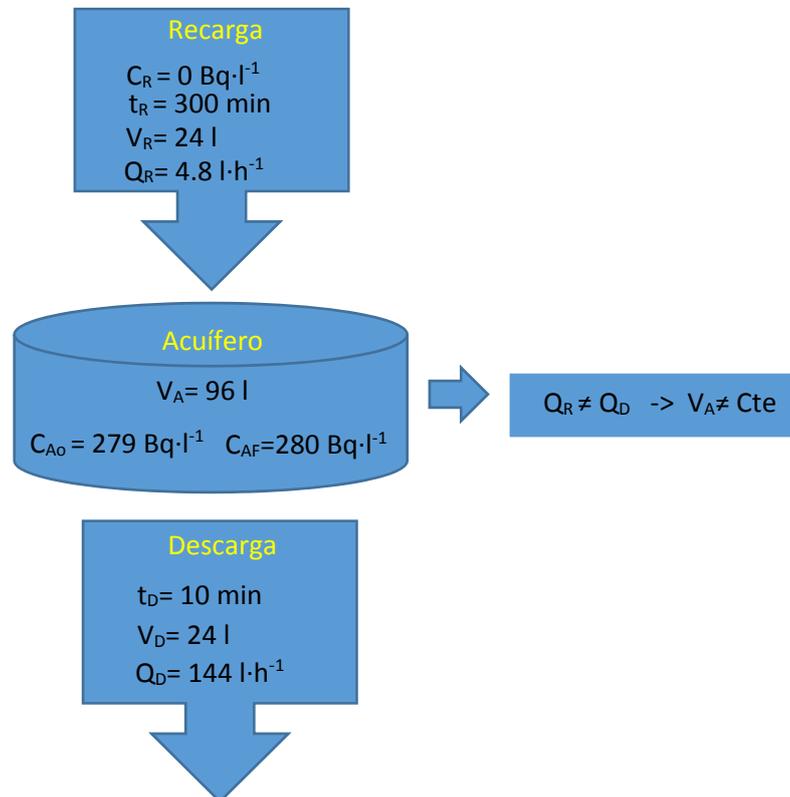


Fig.52: Esquema gráfico del episodio 8.

La concentración de ^{222}Rn en el acuífero es casi la mitad de la existente en los episodios anteriores (realizados un año antes) como consecuencia de la humidificación que sufre la tierra, que origina su apelmazamiento, y disminuye de este modo su poder de exhalación.

Episodio 9: descarga rápida y recarga progresiva con agua rica en ^{222}Rn (31/08/2017).

La Fig.53 presenta toda la información de interés de este “episodio 9” donde se renueva el 25% del volumen del acuífero.

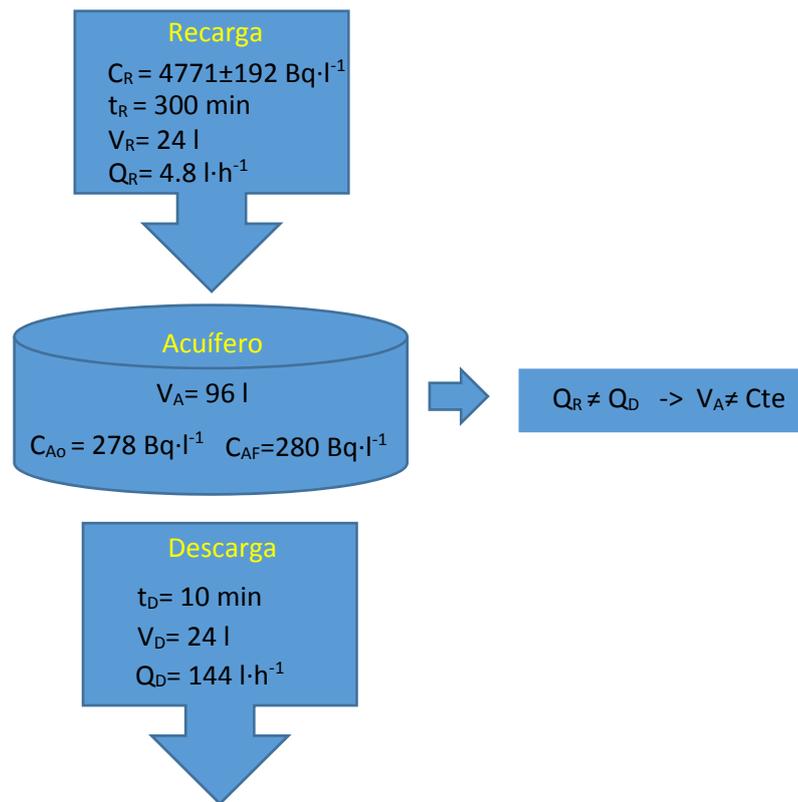


Fig.53: Esquema gráfico del episodio 9.

4) Experimento 4: descarga y recarga progresivas.

Los **episodios 10 y 11** de este **experimento 4** se caracterizan porque las descargas y las recargas se realizan con el mismo caudal y de forma simultánea de forma que el volumen del acuífero simulado permanece constante durante todo el proceso.

Episodio 10: descarga y recarga progresivas con agua del grifo (07/09/2017).

La **Fig.54** presenta toda la información de interés de este “**episodio 10**” donde se renueva el 25% del volumen del acuífero.

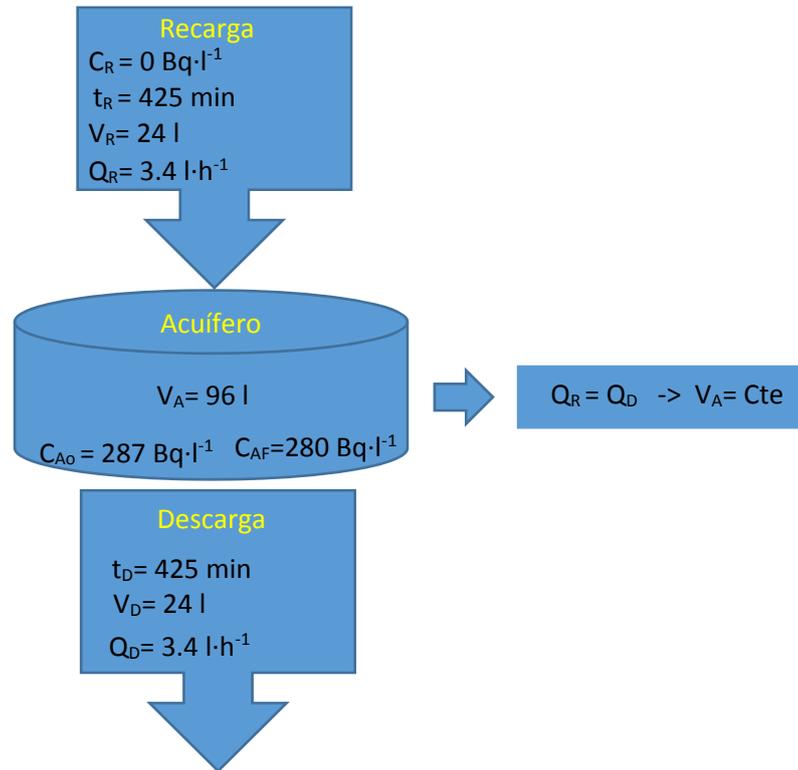


Fig.54: Esquema gráfico del episodio 10.

Episodio 11: descarga y recarga progresivas con agua rica en ^{222}Rn (13/09/2017).

La **Fig.55** presenta toda la información de interés de este “**episodio 11**” donde se renueva el 25% del volumen del acuífero.

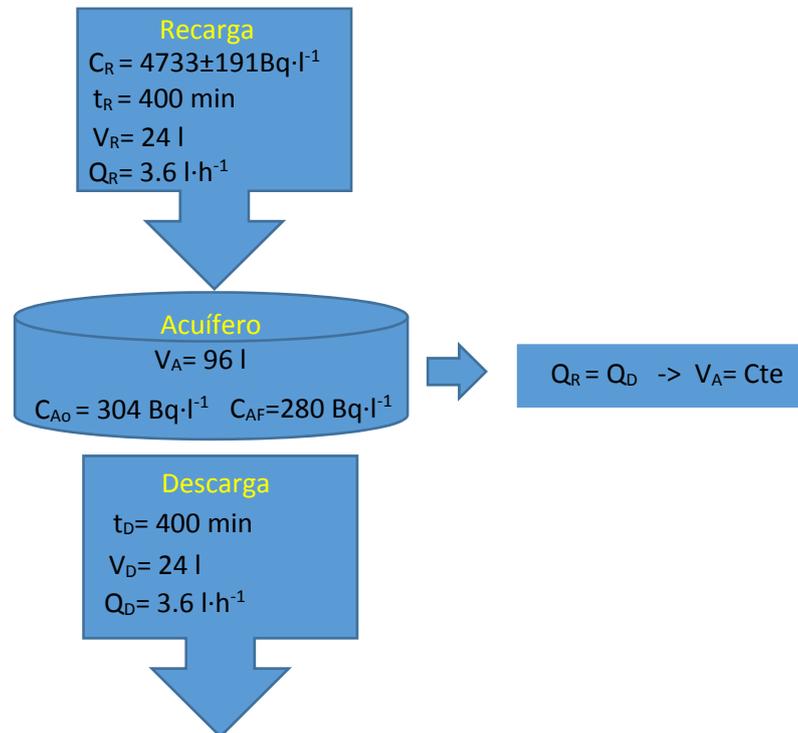


Fig.55: Esquema gráfico del episodio 11.

Una vez finalizada la descripción de todos los episodios que se diseñaron, se debe indicar que a partir de este momento, todos los datos proporcionados por el RTM en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, se presentan en $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ una vez aplicado el factor de calibración con respecto al Triathler calculado en la **Eq.36** o con respecto al Germanio en el **Eq.37** del **Capítulo 5** de esta Memoria.

En la **Fig.56** se puede ver la gráfica general con los 11 episodios descritos de descarga y recarga simulados en el acuífero durante los cerca de 15 meses que se estudió, donde la línea de color verde representa la concentración de ^{222}Rn en $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.

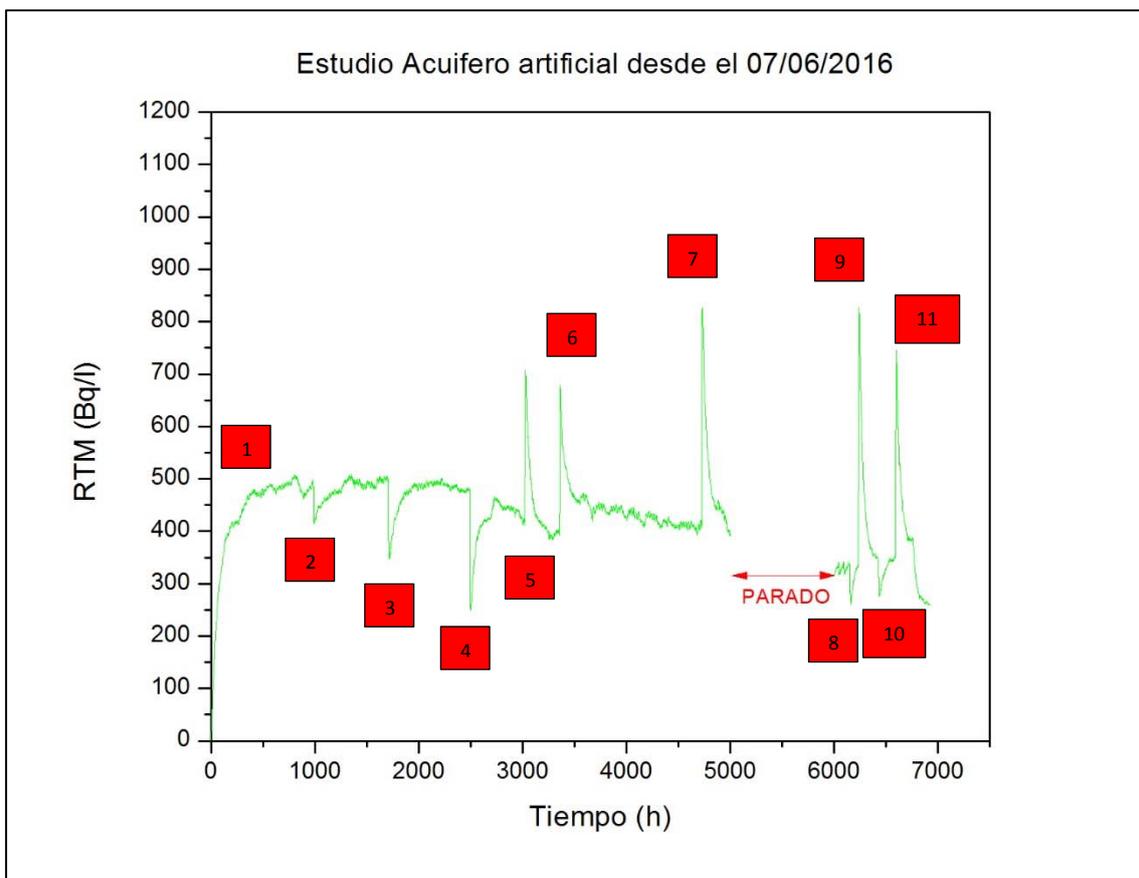


Fig.56: Gráfica general de la variación de concentración de ^{222}Rn registrados en el acuífero simulado durante los distintos episodios de carga y descarga a los que fue sometido.

6.2.2 Diseño del estudio del caso real

El lugar escogido para estudiar la dinámica de los procesos de carga de un acuífero natural fue el Balneario de Las Caldas de Besaya, objeto de estudio por el

Grupo Radón desde la década de los 80 con numerosos trabajos publicados desde entonces, destacando [SOT89;SOT91a;SOT91b;SOT95; SAI16].

El Balneario se encuentra localizado junto al río Besaya en el término municipal de Los Corrales de Buelna ($43^{\circ}17'53''\text{N}$, $4^{\circ}04'23''\text{O}$) a unos 30 km de la capital de la Comunidad Autónoma de Cantabria como puede apreciarse en la **Fig.57**.

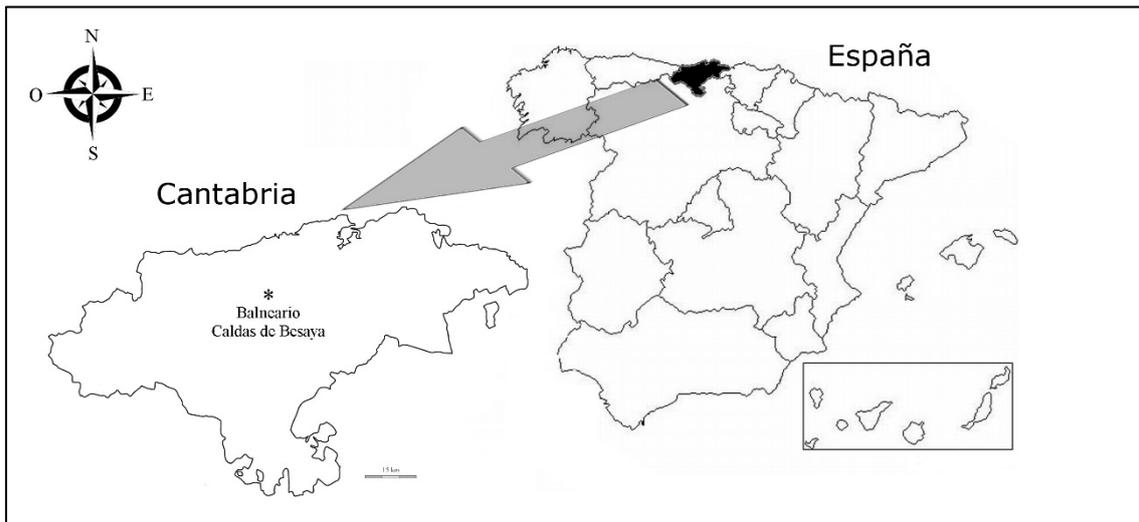


Fig.57: Localización geográfica del Balneario de Las Caldas de Besaya [SAI16].

Sus aguas termales se caracterizan por presentar temperaturas entre 34 y 37 °C con una composición rica en cloruro sódico, bicarbonatos y nitrógenos [SAI16]. Esta fuente termal está asociada a la gran falla cabalgante del Escudo de Cabuérniga, procedente de los picos de Europa, que corre paralelamente a la costa por el sur de dicho escudo. El tipo de roca predominante en esta zona es de origen sedimentario, mayoritariamente calizas grises, dolomías y carniolas [ROB90].

El periodo de apertura anual del Balneario suele ir desde el mes de marzo hasta el mes de diciembre en horario de mañana. Entre los servicios y técnicas de tratamiento ofertados se encuentran los baños, chorros, duchas circulares, baños de burbujas, inhalaciones, pulverizaciones, sauna, masaje subacuático y masaje manual.

En la **Fig.58** se puede ver la distribución interior que presenta la Sala de Termas para poder desarrollar los diferentes servicios ofertados por el Balneario. También resulta apreciable donde se encuentra localizado el Pozo Exterior, lugar de donde se realiza parte de la captación del agua hacia las instalaciones con la ayuda de una

bomba. Una parte importante de esta captación desemboca en el Pozo Principal situado en el interior del Balneario que fue donde se colocó el RTM además de otros dispositivos de interés para controlar el ^{222}Rn en aire.

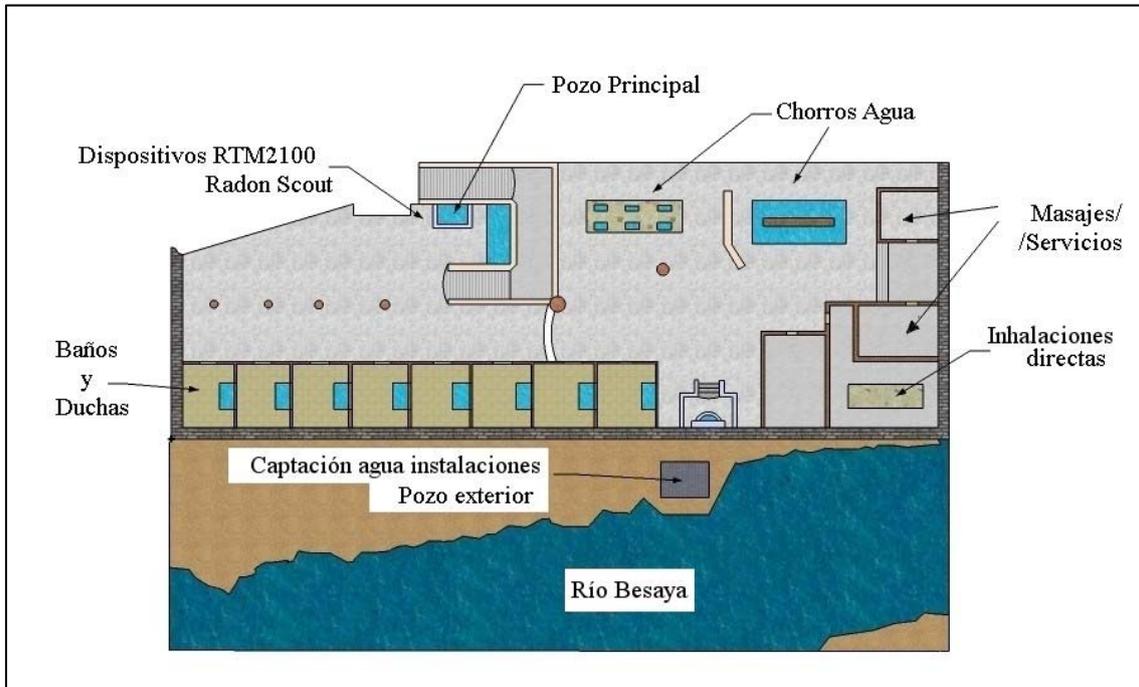


Fig.58: Vista superior de la distribución interior de la Sala de Termas del Balneario de las Caldas de Besaya junto al paso del río Besaya [RAB13].

La función principal de la bomba es surtir a elementos que necesiten una presión superior a la que proporcionan los manantiales naturales y aumentar el caudal de agua en las duchas y en los tratamientos de chorros. Se tiene constancia que este sistema de extracción de agua funciona diariamente desde la seis de la mañana hasta las doce del mediodía aproximadamente. Aparte de esta fuente externa de agua, el Balneario cuenta con siete manantiales, siendo el más caudaloso el denominado Pozo Principal.

El motivo de seleccionar este Balneario fue la información que ya disponía nuestro grupo de trabajo sobre las elevadas concentraciones de ^{222}Rn en agua además de las facilidades de la dirección del Balneario para poder realizar todos los trabajos de investigación debido al estrecho y cordial trato a causa del largo historial conjunto. De los anteriores trabajos [SOT91a; SOT95] en la Tab.19 se pueden ver los valores de las concentraciones de ^{222}Rn en agua establecidos en los estudios anteriormente citados sobre las aguas del Balneario.

Tab.19: Concentraciones de ^{222}Rn en el agua del Balneario de Las Caldas de Besaya según publicaciones anteriores.

LOCALIZACIÓN	CONCENTRACIÓN ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$)
Pozo Principal	820 ± 50
Pozo Exterior	560 ± 80

Tras los primeros registros proporcionados por el RTM se observó un comportamiento periódico de la concentración de ^{222}Rn en el agua en función del tiempo que claramente pueden ser explicados como consecuencia del horario de atención al público que ofrece el Balneario de Las Caldas.

En la **Fig.59** puede apreciarse la existencia de los dos comportamientos mencionados anteriormente, además de representarse los 5 episodios de recarga analizados en el acuífero y que se encuentran representados por cada campana:

- el primero es el aumento de la concentración hasta alcanzar un máximo, consecuencia del periodo de reposo que experimenta el pozo principal al no existir actividad del Balneario.
- el segundo es el decaimiento de la concentración de ^{222}Rn hasta llegar a un valor mínimo, que sucede entre las 6 de la mañana y las 12 del mediodía, periodo de funcionamiento de la bomba para abastecer las necesidades del Balneario.

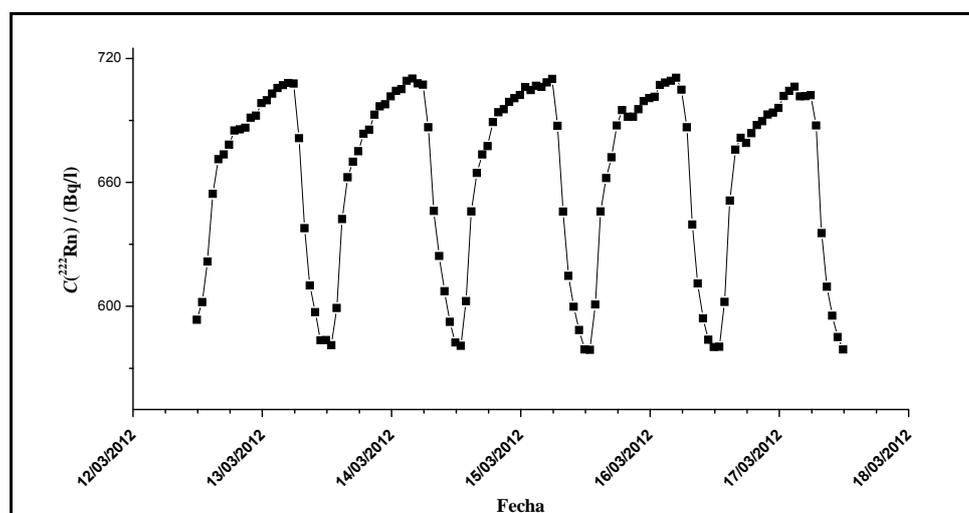


Fig.59: Datos experimentales de la concentración de ^{222}Rn en agua en función del tiempo, obtenidos con el dispositivo RTM 2100 entre los días 12 y 17 de marzo del 2012.

El control del Pozo Principal con el RTM 2100 comenzó en marzo del 2012 y finalizó en febrero del 2013 lo que permitió disponer de una enorme cantidad de registros al producirse una recarga diaria. Para este estudio se decidió analizar una sola recarga por mes para observar las posibles diferencias estacionales que pudieran existir. Por este motivo los 5 episodios de recarga del acuífero del Balneario de Las Caldas de Besaya que se analizaron fueron los siguientes:

- 1) Primera recarga: 10 Marzo del 2012.
- 2) Segunda recarga: 25 Abril del 2012.
- 3) Tercera recarga: 13 Mayo del 2012.
- 4) Cuarta recarga: 19 Junio del 2012.
- 5) Quinta recarga: 7 Julio del 2012.

Tras finalizar con el diseño de experimentos tanto en el acuífero simulado como en el caso real es el momento de presentar en el **Capítulo 7** los resultados obtenidos en todos los episodios analizados.

CAPÍTULO

7 Resultados de los episodios analizados

7.1 Resultados en el acuífero simulado

7.1.1 Experimento 1: crecimiento inicial acuífero

7.1.2 Experimento 2: descarga y recarga rápidas

7.1.3 Experimento 3: descarga rápida y recarga progresiva

7.1.4 Experimento 4: descarga y recarga progresivas

7.2 Resultados en el caso real: Las Caldas de Besaya

7.2.1 1^{ra} recarga: Marzo 2012

7.2.2 2^{da} recarga: Abril 2012

7.2.3 3^{ra} recarga: Mayo 2012

7.2.4 4^{ta} recarga: Junio 2012

7.2.5 5^{ta} recarga: Julio 2012

A continuación se procede a detallar cada episodio descrito en el capítulo anterior aplicando el ajuste de Modelo de Compartimento Cerrado (MCC) o el Modelo de Compartimento Abierto (MCA) según corresponda.

7.1 Resultados en el acuífero simulado

El estudio de los procesos de recarga simulados con agua de lluvia y con agua subterránea, permiten la obtención de los parámetros característicos de cada episodio y que se analizarán junto con los obtenidos para el Balneario de las Caldas de Besaya en el próximo capítulo de análisis de resultados.

7.1.1 Experimento 1: crecimiento inicial acuífero

Los datos del crecimiento inicial de ^{222}Rn (**episodio 1**) se representaron en la **Fig.60** en forma de puntos negros. En esta misma figura, la línea continua de color rojo, es el ajuste que se ha realizado a estos datos aplicando la **Eq.48** del MCC, de forma que se ha obtenido un R-square de 0.98.

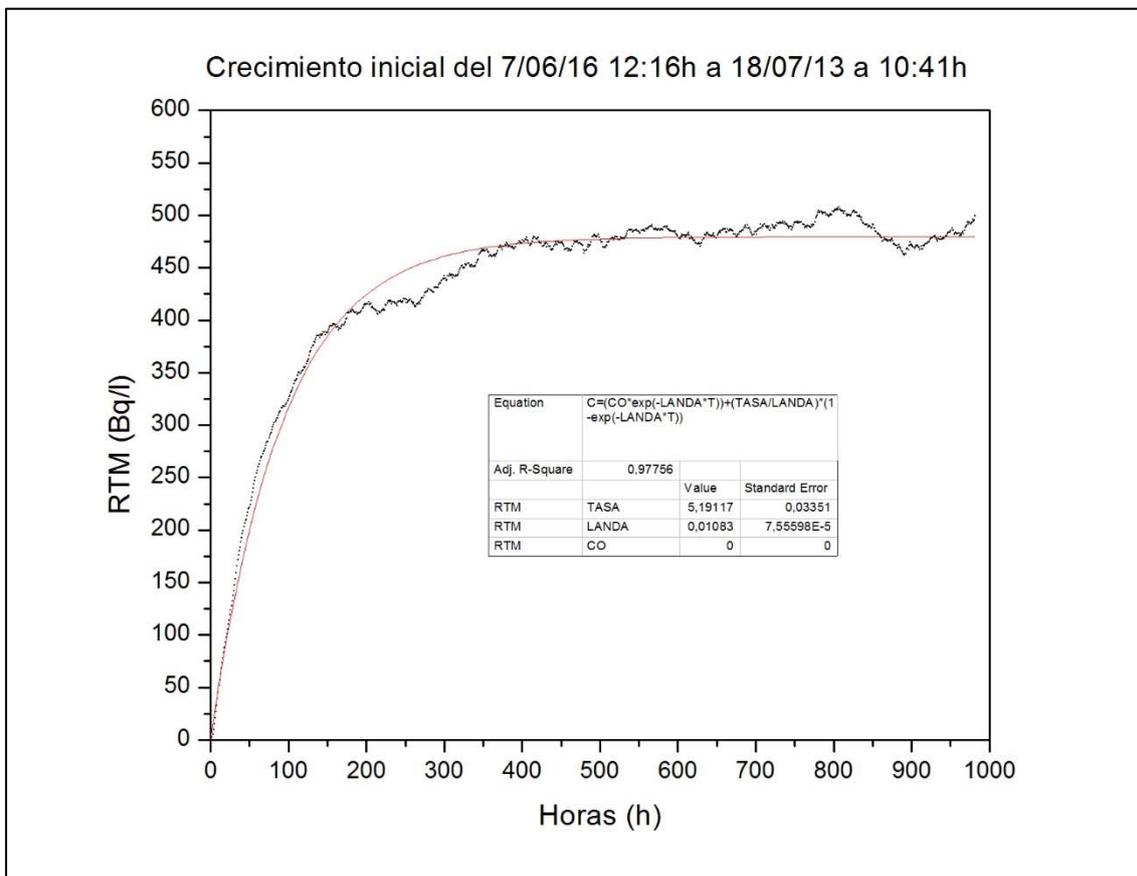


Fig.60: Representación gráfica del crecimiento inicial de ^{222}Rn experimentado por el acuífero simulado con el ajuste realizado respecto al MCC.

Como se puede observar en la **Fig.60**, la concentración de ^{222}Rn en el acuífero llega a alcanzar un valor de equilibrio cercano a los $500 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ a partir de las 400 h, y se mantiene cercano a ese valor hasta el instante que se decide dar por terminada esta primera etapa de crecimiento cerca de las 1000 h.

Del ajuste realizado respecto al MCC, se obtienen los siguientes parámetros:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 5.2 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.011 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 0 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

7.1.2 Experimento 2: descarga y recarga rápidas

“Episodio 2”

En la **Fig.61**, se representan los datos registrados por el RTM una vez realizada la recarga del acuífero con agua de grifo que tuvo lugar el 18 de julio del 2016 a las 14:45 h. Observando la **Fig.61**, se observa como en apenas 7 h se alcanza un valor mínimo de ^{222}Rn entorno a $410 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. En línea roja se representa el ajuste que se realiza a los datos representados aplicando la **Eq.51** del MCA, obteniéndose un R-square de 0.94 que indica un muy buen ajuste. Para realizar este ajuste, se fijó λ^* (**Eq.53**) al determinar λ con la **Fig.62** y λ_l con la **Eq.54**.

Del ajuste realizado a los datos experimentales representados por puntos negros respecto a la **Eq.51** del MCA (línea roja), los parámetros de interés que se obtienen y que posteriormente resultarán de utilidad cuando se analicen todos los episodios conjuntamente son:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 444.5 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 1.071 \text{ h}^{-1} = \lambda + \lambda_l = 0.012 + 1.059 \\ C_0 = 478 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

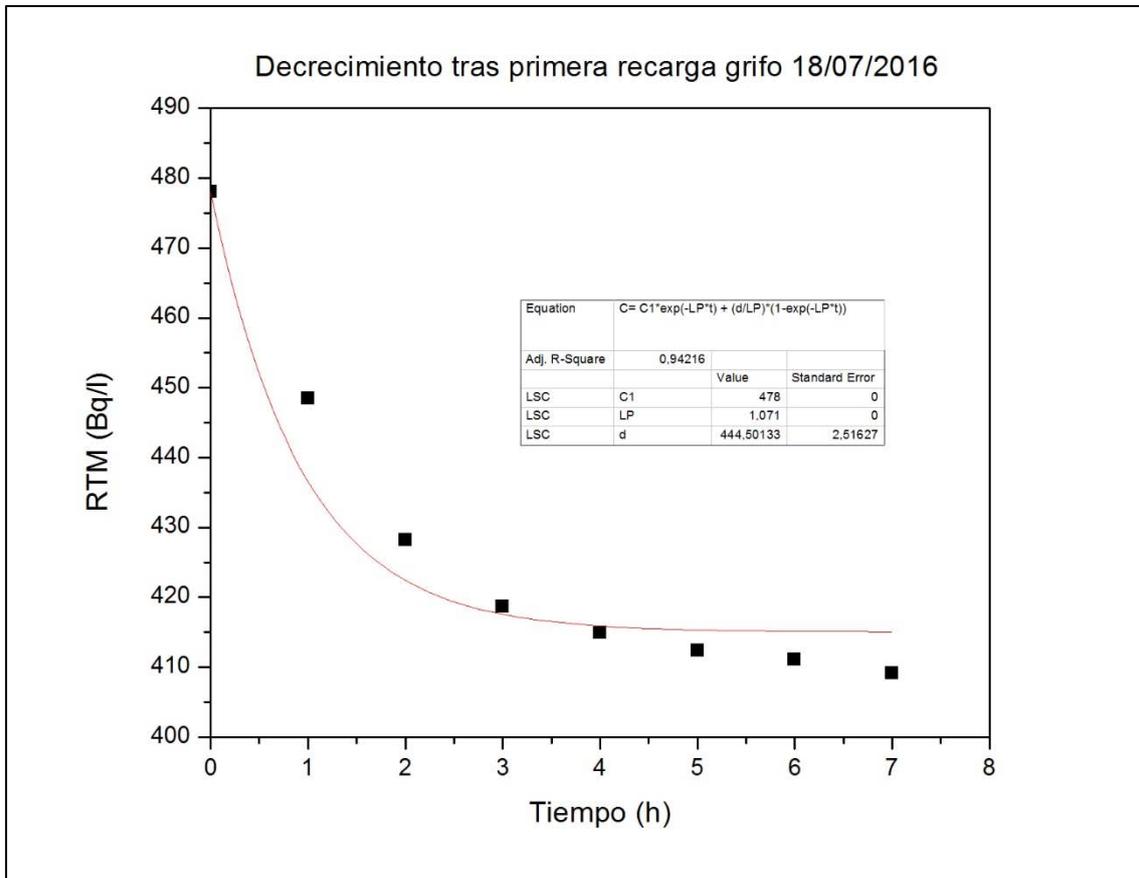


Fig.61: Representación gráfica del decrecimiento de ^{222}Rn tras recarga con agua del grifo experimentado por el acuífero simulado junto con el ajuste realizado respecto al MCA.

En la **Fig.62**, se representa el proceso de crecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero una vez alcanzado el valor mínimo tras recibir el aporte de agua del grifo. A los datos experimentales representados en la **Fig.62** por puntos negros, se les realiza un ajuste respecto a la **Eq.48** del MCC obteniéndose un R-square de 0.96 y como parámetros característicos:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 6.0 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.012 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 416 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

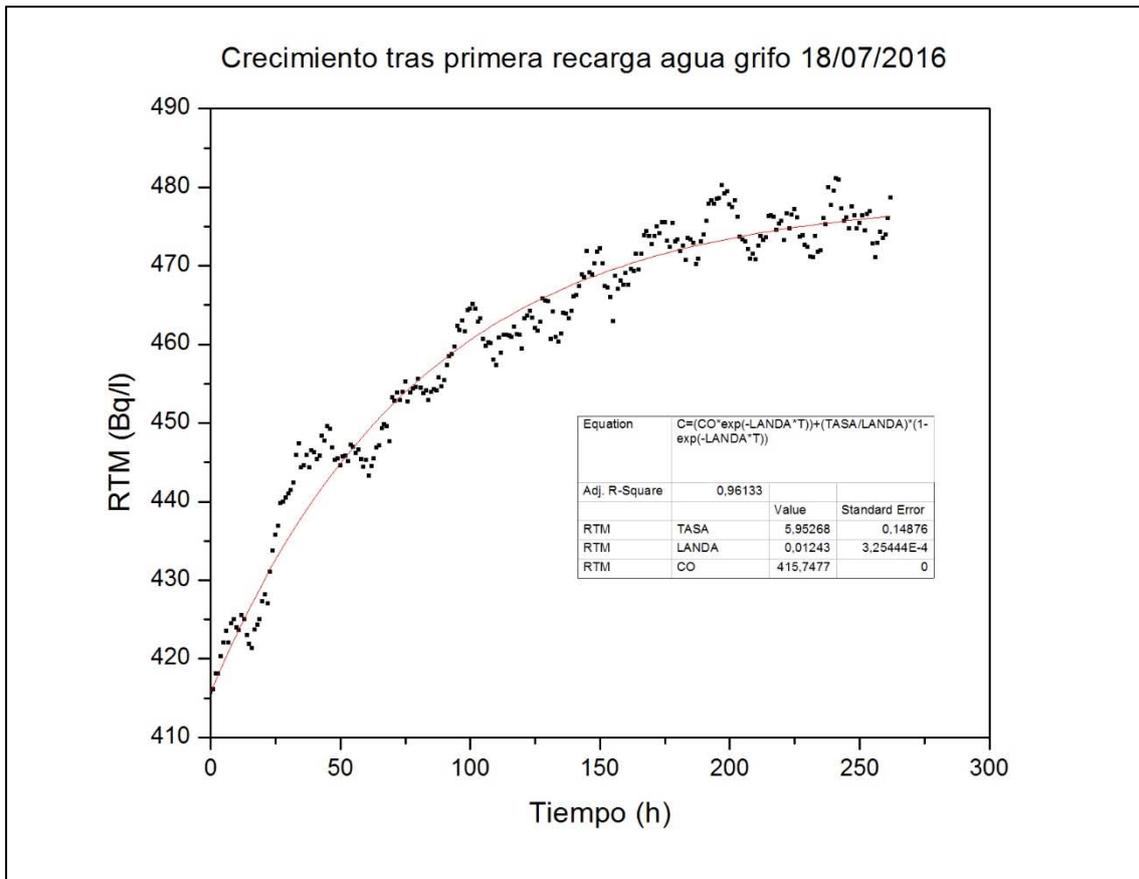


Fig.62: Representación gráfica del crecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras el decrecimiento provocado por la recarga con agua del grifo experimentado por el acuífero simulado junto con el ajuste realizado respecto al MCC.

“Episodio 3”

Una vez se estabiliza la concentración de ^{222}Rn cerca de los $500 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ tras el **episodio 2** de recarga con agua del grifo, comienza la realización de este nuevo episodio de descarga y recarga con agua del grifo.

En la **Fig.63**, se representan los datos una vez realizada la segunda recarga del acuífero con agua de grifo que tuvo lugar el 17 de agosto del 2016 a las 17:45 h. Observando la **Fig.63**, se puede ver cómo nuevamente en apenas 8 h vuelve a alcanzarse un valor mínimo en la concentración de ^{222}Rn . En esta ocasión, el valor mínimo de ^{222}Rn alcanzado es bastante menor al visto en el caso anterior como consecuencia de utilizar una mayor cantidad de agua en la recarga, acercándose su valor entorno a $345 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.

Con la línea roja vuelve a representarse el ajuste que se realiza a los datos registrados por el RTM (color negro) con respecto a la **Eq.51** del MCA, obteniéndose un R-square de 0.87 que vuelve a indicar que se ha realizado un buen ajuste. Para realizar este ajuste, se fijó λ^* (**Eq.53**) al determinar λ con la **Fig.64** y λ_1 con la **Eq.54**.

Los parámetros de interés que se obtienen en esta ocasión al aplicar el ajuste respecto al modelo MCA y que pueden verse en la **Fig.63** son:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 420.1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 1.174 \text{ h}^{-1} = \lambda + \lambda_1 = 0.013 + 1.161 \\ C_0 = 490 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

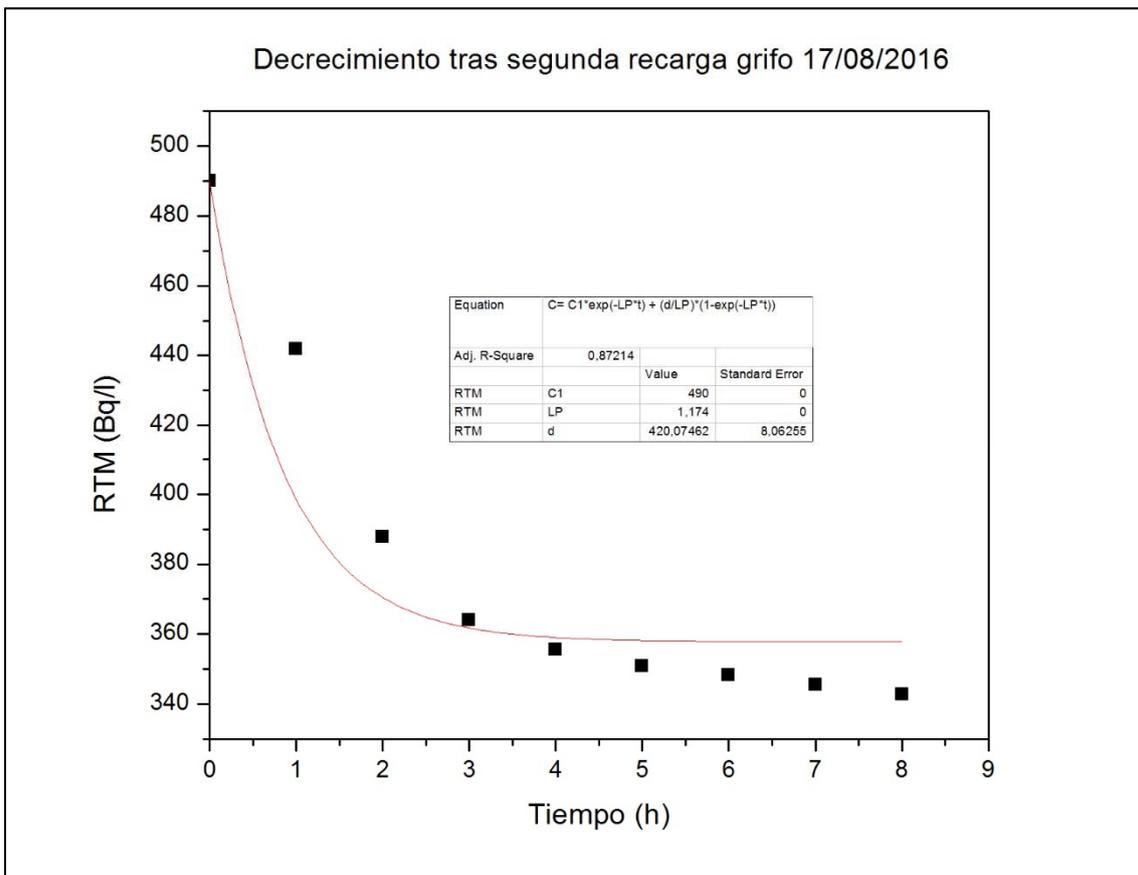


Fig.63: Representación gráfica del decaimiento de ^{222}Rn tras la recarga de 31.3 l con agua del grifo experimentado por el acuífero simulado junto con el ajuste realizado respecto al MCA.

Una vez el ^{222}Rn alcanza su valor mínimo tras la nueva recarga (**Fig.63**) que experimenta el acuífero con el agua del grifo, el sistema comienza nuevamente a aumentar su concentración hasta volver a alcanzar el equilibrio cuando han transcurrido cerca de 400 h. En la **Fig.64** se observa como nuevamente se realiza un ajuste de los datos experimentales con la **Eq.48** del MCC obteniéndose un R-square de 0.99.

Los parámetros característicos resultantes de este nuevo ajuste son:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 6.3 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.013 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 347 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

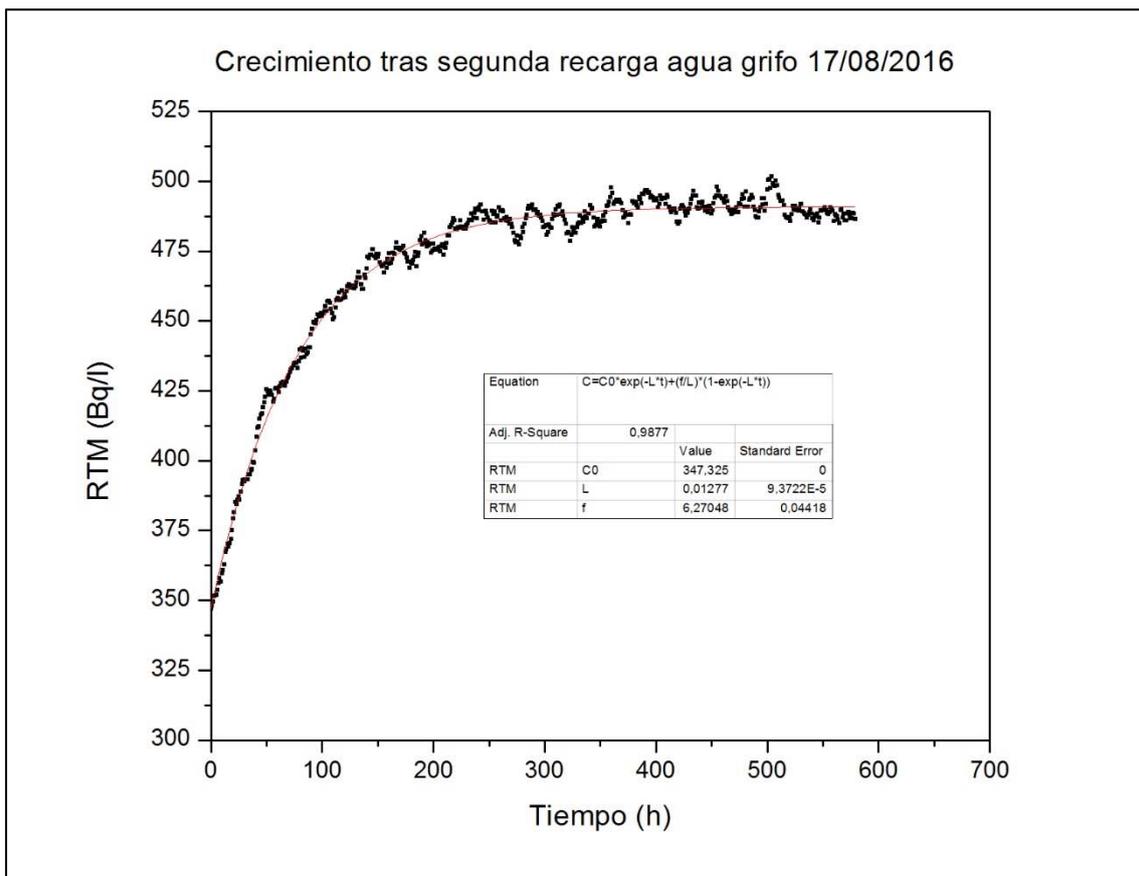


Fig.64: Representación gráfica del crecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras el decrecimiento provocado por la recarga con agua del grifo (31.3 l) experimentado por el acuífero simulado junto con el ajuste realizado respecto al MCC.

“Episodio 4”

El acuífero vuelve a estabilizar su concentración de ^{222}Rn nuevamente cerca de los $500 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. En esta ocasión, el **episodio 4** con agua del grifo, afecta a un mayor volumen del acuífero que los episodios anteriores.

En la **Fig.65**, se pueden observar los datos registrados por el RTM una vez realizada la recarga con agua del grifo el 19 de septiembre del 2016 a las 09:45 h.

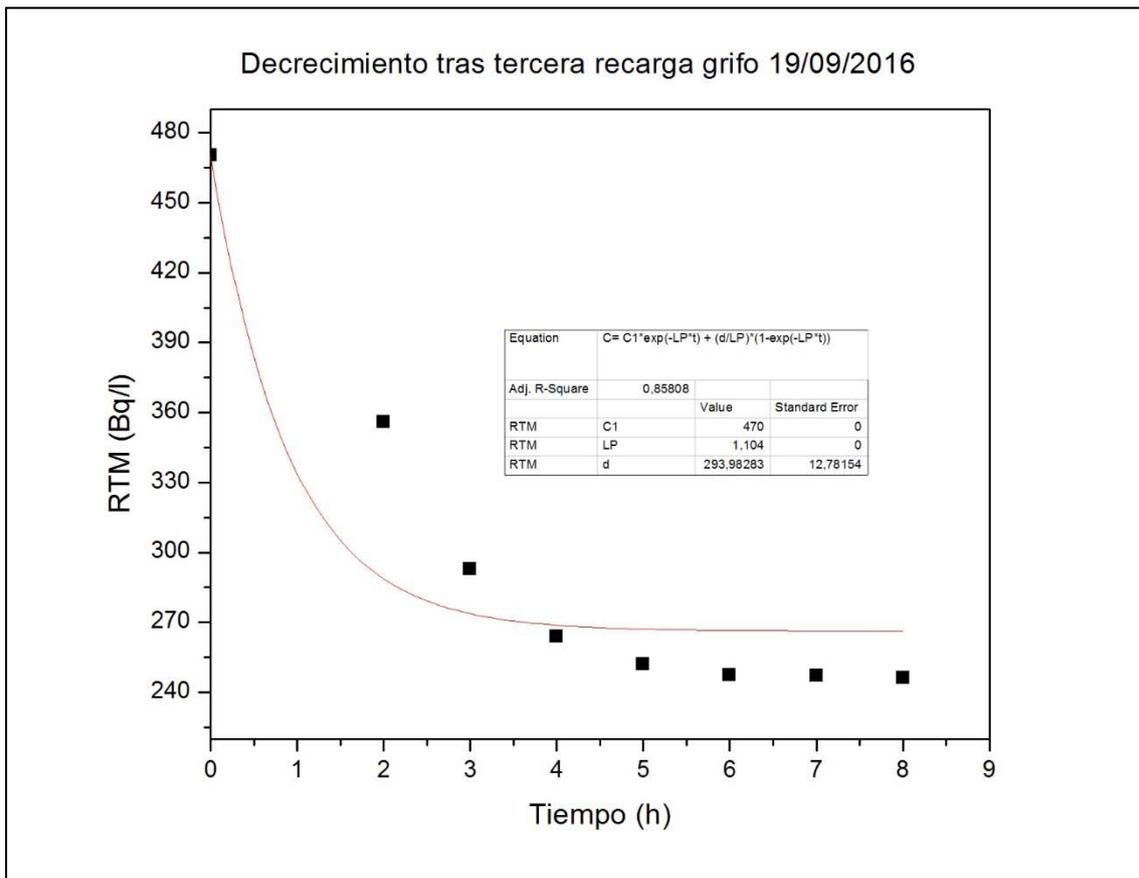


Fig.65: Representación gráfica del decaimiento de ^{222}Rn tras la recarga de 50 l con agua del grifo experimentado por el acuífero simulado junto con el ajuste realizado respecto al MCA.

De nuevo, en menos de 9 horas, el agua del acuífero vuelve a alcanzar el valor mínimo de ^{222}Rn antes de volver a crecer. En este cuarto episodio, se alcanza un valor mínimo de ^{222}Rn entorno a $255 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$, bastante menor que el observado en las dos experiencias ya estudiadas como consecuencia del mayor volumen de agua del grifo implicado en la recarga.

A los datos experimentales (puntos negros) representados en la **Fig.65** se les ajusta nuevamente respecto a la **Eq.51** del modelo MCA obteniendo un R-square de 0.86 que nuevamente implica ser un buen resultado. Para realizar este ajuste, se fijó λ^* (**Eq.53**) al determinar λ con la **Fig.66** y λ_1 con la **Eq.54**. Los parámetros de interés resultantes de aplicar este ajuste son:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 294.0 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 1.104 \text{ h}^{-1} = \lambda + \lambda_1 = 0.017 + 1.086 \\ C_0 = 470 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

Transcurrido cerca de 300 h desde la realización de la recarga con agua del grifo, la concentración de ^{222}Rn vuelve a alcanzar su valor de equilibrio en el acuífero con valores cercanos a los 500 $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. En esta ocasión, se puede observar en la **Fig.66** el ajuste (línea roja) de los datos experimentales (puntos negros) obtenidos respecto a la **Eq.48** del MCC, lográndose nuevamente un muy buen valor del R-square: 0.97.

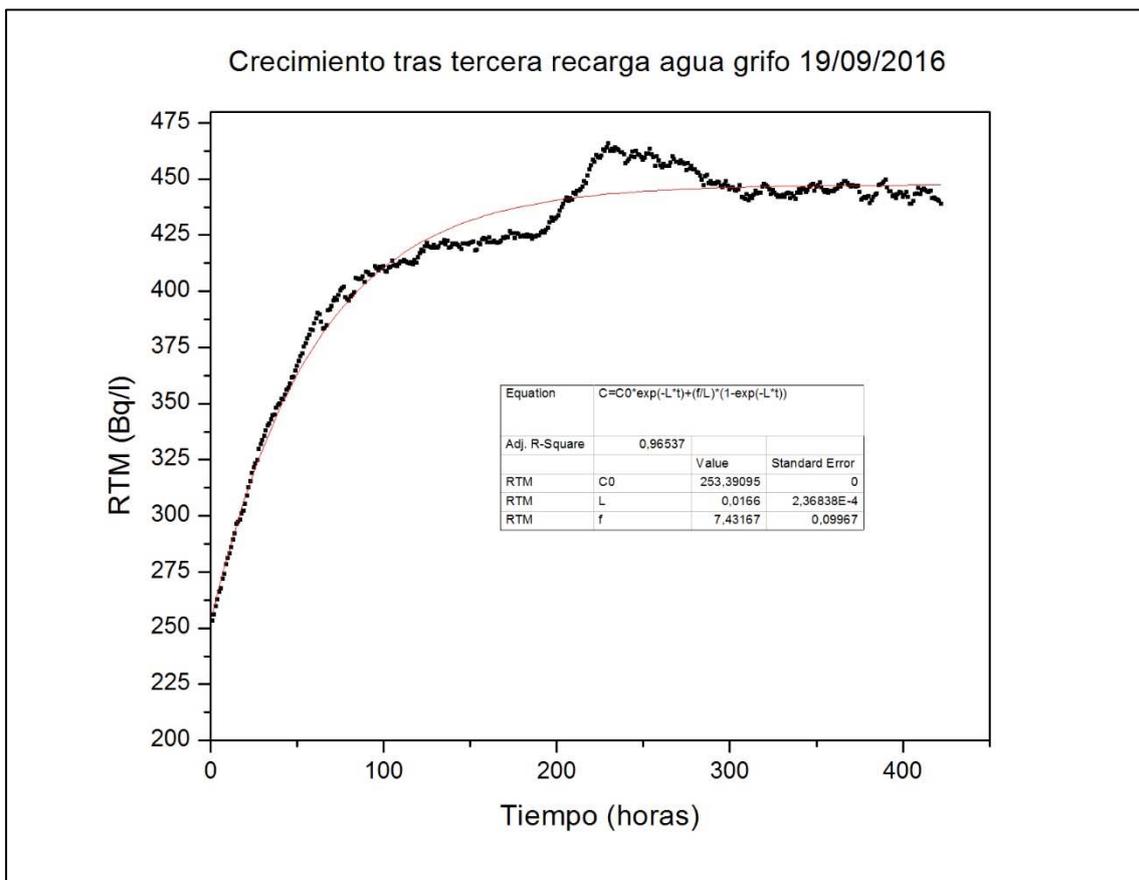


Fig.66: Representación gráfica del crecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras el decrecimiento provocado por la recarga con agua del grifo (50 l) experimentado por el acuífero simulado junto con el ajuste realizado respecto al MCC.

Los parámetros que se obtienen con el ajuste que puede verse en la **Fig.66** son:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 7.4 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.017 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 253 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

“Episodio 5”

En la **Fig.67** se representan los valores registrados por el RTM justo después de realizar la recarga con el agua preparada en la nevera que presentaba una concentración de $3013 \pm 124 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. La recarga tuvo lugar el 11 de octubre de 2016 a las 12:45 h y se puede observar como la concentración de radón crece rápidamente logrando alcanzar en 4 h el valor máximo que ronda los $700 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. En este caso, el ajuste (línea roja) se realiza con respecto a la **Eq.51** del MCA lográndose un R-square de 0.95. Para realizar este ajuste, se fijó λ^* (**Eq.53**) al determinar λ con la **Fig.68** y λ_1 con la **Eq.54**.

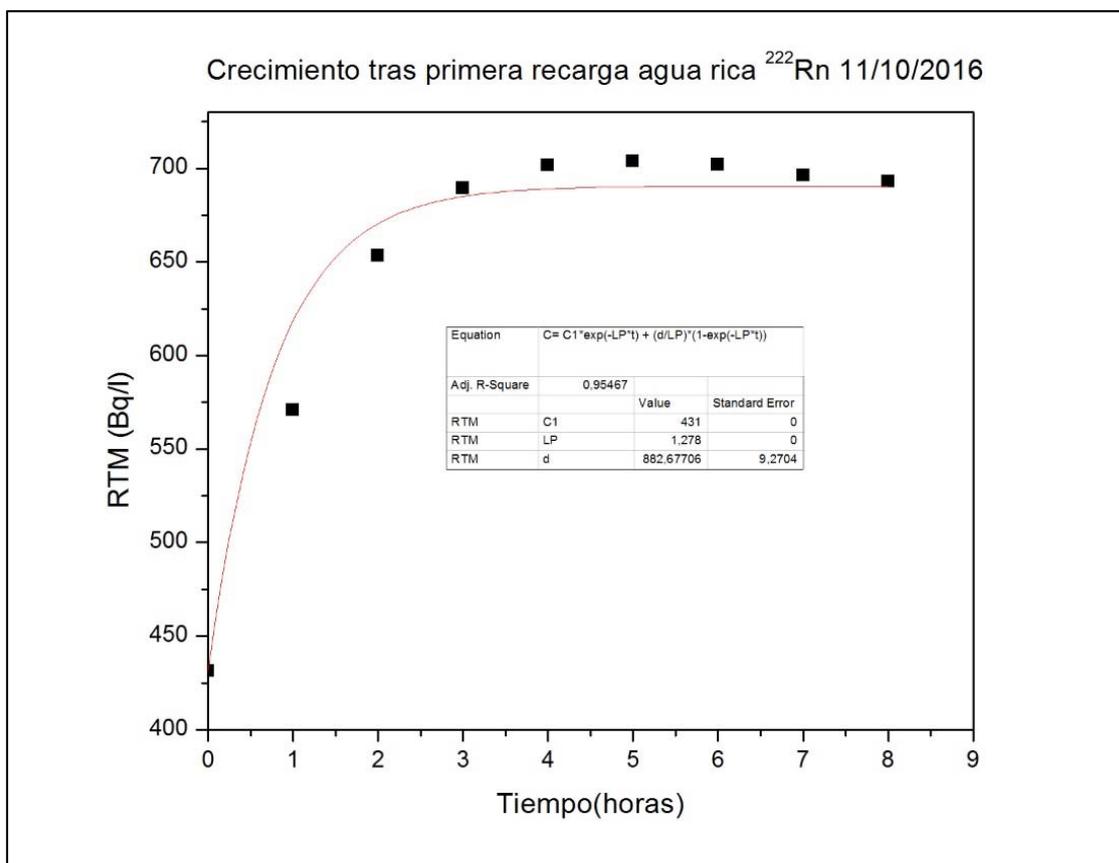


Fig.67: Representación gráfica del crecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras la recarga con 16.6 l de agua rica en ^{222}Rn ($3013 \pm 124 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) junto con el ajuste realizado respecto al MCA.

Los parámetros obtenidos del ajuste realizado respecto al modelo MCA en esta recarga simulada con agua profunda son:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 882.7 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 1.278 \text{ h}^{-1} = \lambda + \lambda_1 = 0.024 + 1.254 \\ C_0 = 431 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

Tras la recarga comienza el periodo de decrecimiento de la concentración de ^{222}Rn en el agua hasta alcanzar sus condiciones de equilibrio. Esta situación se puede ver en la **Fig.68**.

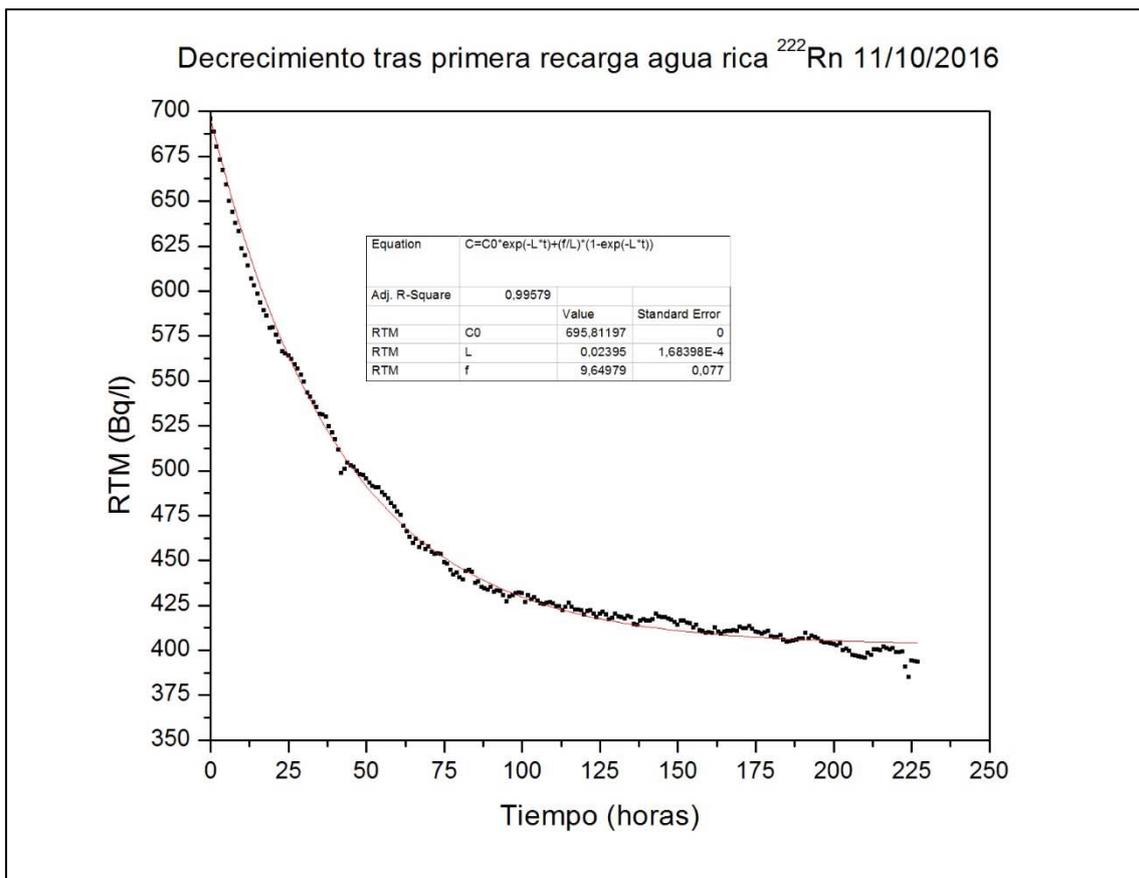


Fig.68: Representación gráfica del decrecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras la recarga con 16.6 l de agua rica en ^{222}Rn ($3013 \pm 124 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) junto con el ajuste realizado respecto al MCC.

Tal como puede verse en la **Fig.68**, tras alcanzar un valor máximo cercano a los $700 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ la concentración disminuye hasta alcanzar un valor estable entorno a $400 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ transcurridas aproximadamente 225 h. Los parámetros que se obtienen del ajuste realizado respecto a la **Eq.48** del MCC en el que se logra un R-square de 0.99 son:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 9.6 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.024 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 696 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

“Episodio 6”

En la **Fig.69** se puede ver la variación de la concentración desde el instante en que se realizó la recarga el 25 de octubre a las 10:45 h. Como se aprecia, en apenas 4 h se alcanza el valor máximo de ^{222}Rn en el agua que como en el caso anterior es un valor cercano a $700 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.

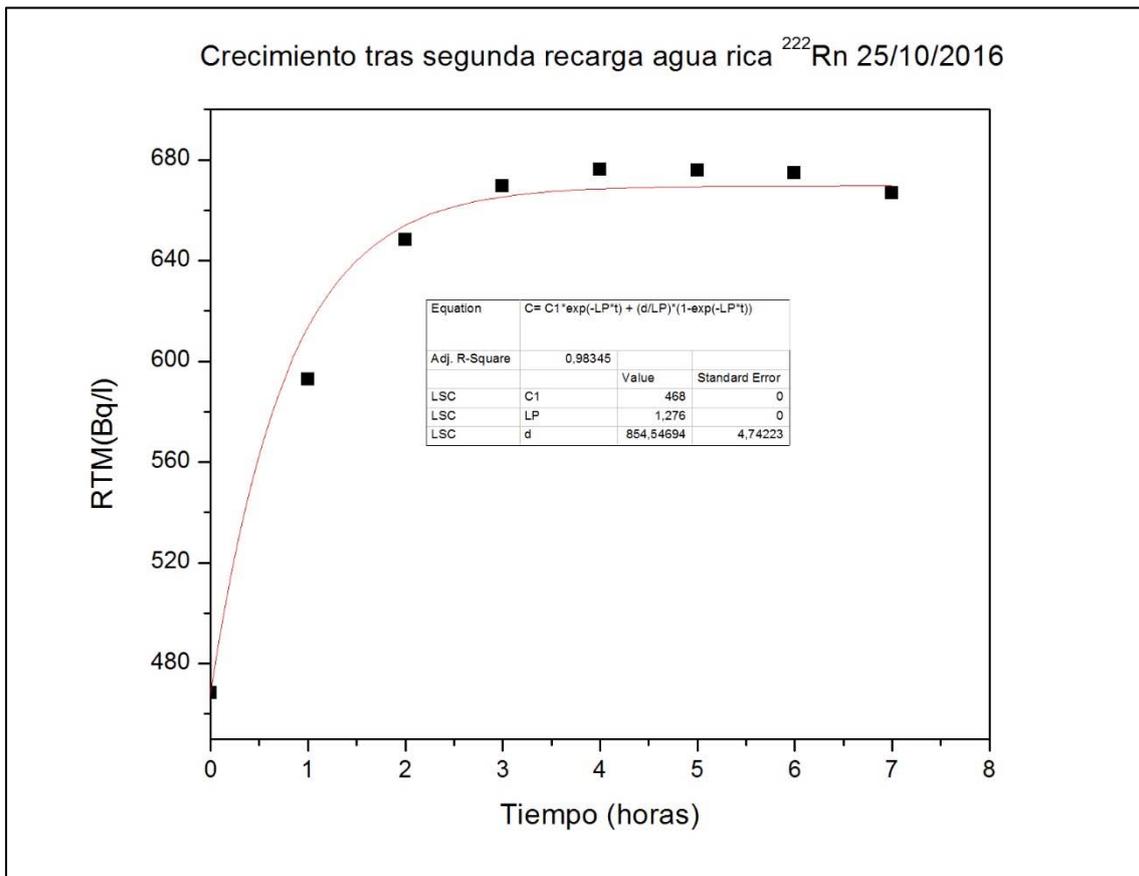


Fig.69: Representación gráfica del crecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras la recarga con 16.6 l de agua rica en ^{222}Rn ($2579 \pm 107 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) junto con el ajuste realizado respecto al MCA.

A los datos experimentales representados (puntos negros) se les realiza un ajuste (línea roja) respecto a la **Eq.51** del MCA, obteniéndose un buen valor de R-square de 0.98. Para realizar este ajuste, se fijó λ^* (**Eq.53**) al determinar λ con la **Fig.70** y λ_1 con la **Eq.54**. Los parámetros que se obtienen de este ajuste respecto al MCA con esta recarga de agua rica en ^{222}Rn son:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 854.5 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 1.276 \text{ h}^{-1} = \lambda + \lambda_1 = 0.022 + 1.254 \\ C_0 = 468 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

Una vez alcanzado el valor máximo comienza el decrecimiento de ^{222}Rn en el agua tal como puede observarse en la **Fig.70**, en la que tras aproximadamente 250 h el acuífero vuelve a alcanzar el equilibrio entorno a $470 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. En la **Fig.70** también se observa el ajuste (línea roja) que se realiza a los datos experimentales (puntos negros) respecto a la **Eq.48** del MCC, resultando un buen valor de R-square con 0.95.

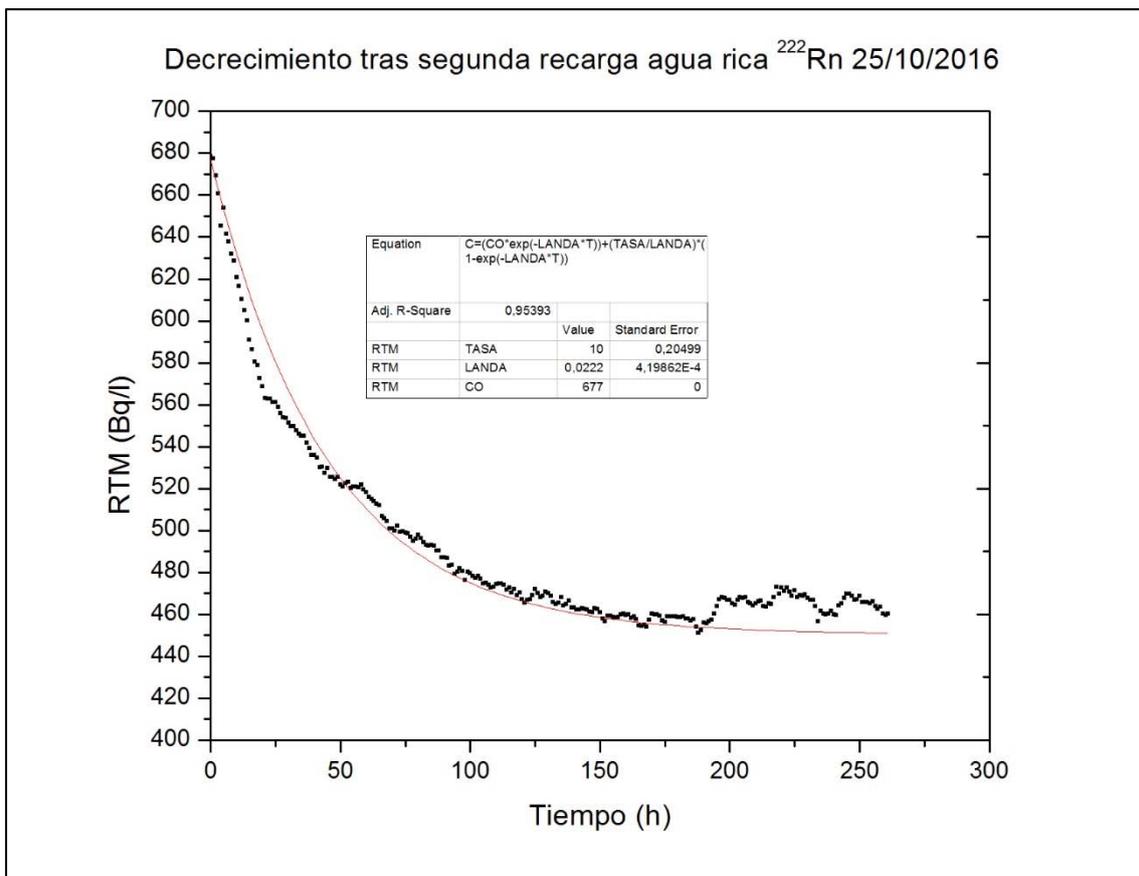


Fig.70: Representación gráfica del decrecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras la recarga con 16.6 l de agua rica en ^{222}Rn ($2579 \pm 107 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) junto con el ajuste realizado respecto al MCC.

Los parámetros que se obtienen del ajuste al MCC realizado en la **Fig.70** son:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 10.0 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.022 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 677 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

“Episodio 7”

En la **Fig.71** se puede ver la evolución que experimenta el ^{222}Rn tras la recarga realizada el 21 de diciembre a las 16:31 h, donde en apenas 4-5 h vuelve a alcanzarse el valor máximo entorno a $800 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. Este valor máximo es superior a las dos experiencias anteriores como consecuencia del mayor volumen de agua rica en ^{222}Rn implicada en la recarga del acuífero.

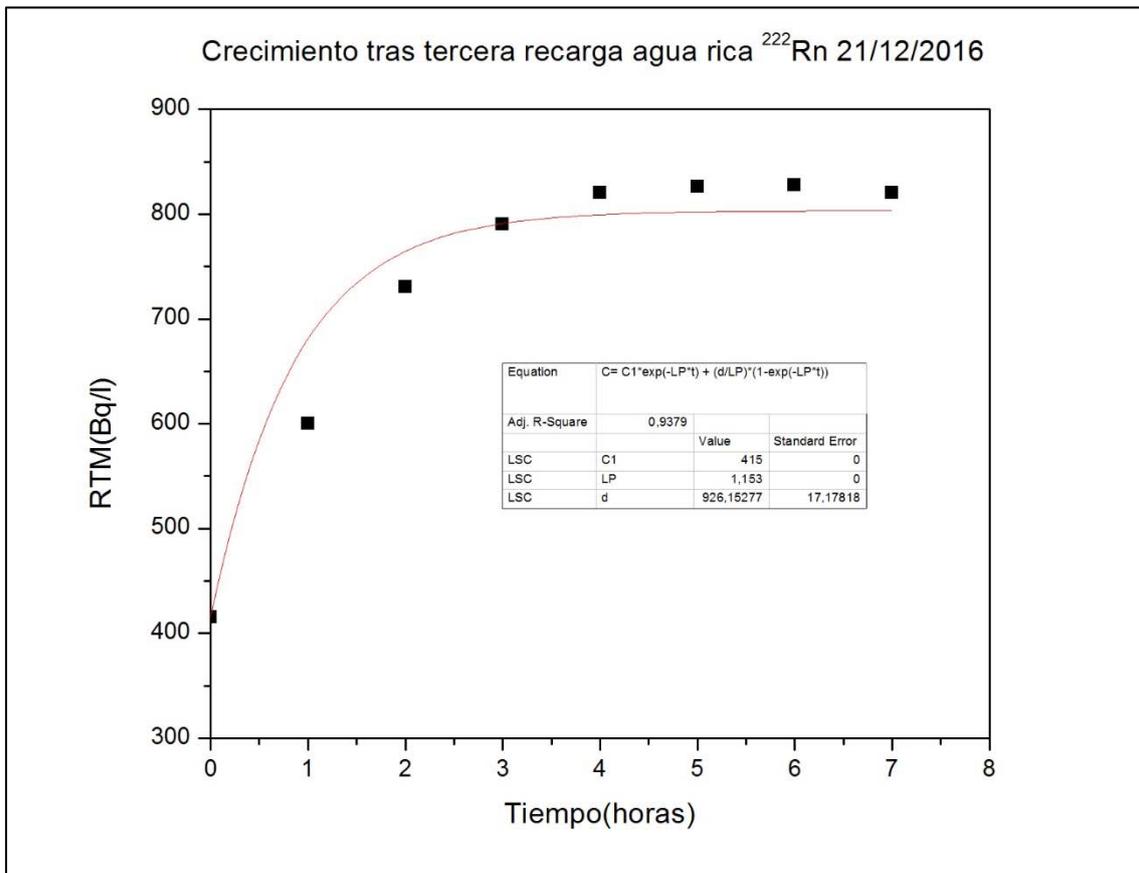


Fig.71: Representación gráfica del crecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras la recarga con 44 l de agua rica en ^{222}Rn ($3130 \pm 128 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) junto con el ajuste realizado respecto al MCA.

Los puntos negros de la **Fig.71** representan los valores experimentales registrados cada hora por el RTM una vez realizada la recarga, frente a la línea roja que representa el ajuste realizado a estos datos experimentales respecto a la **Eq.51** del MCA. El valor del R-square que se obtiene en este ajuste es de 0.94, resultando plenamente satisfactorio. Para realizar este ajuste, se fijó λ^* (**Eq.53**) al determinar λ con la **Fig.72** y λ_l con la **Eq.54** y los parámetros que se obtienen en este ajuste realizado respecto al MCA que se puede ver en esta **Fig.71** son:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 926.2 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 1.153 \text{ h}^{-1} = \lambda + \lambda_l = 0.025 + 1.128 \\ C_0 = 415 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

Una vez se alcanza el valor máximo de ^{222}Rn que se produce transcurridas 4-5 h de la recarga, comienza el decrecimiento que experimenta la concentración de ^{222}Rn y que puede observarse en la **Fig.72**.

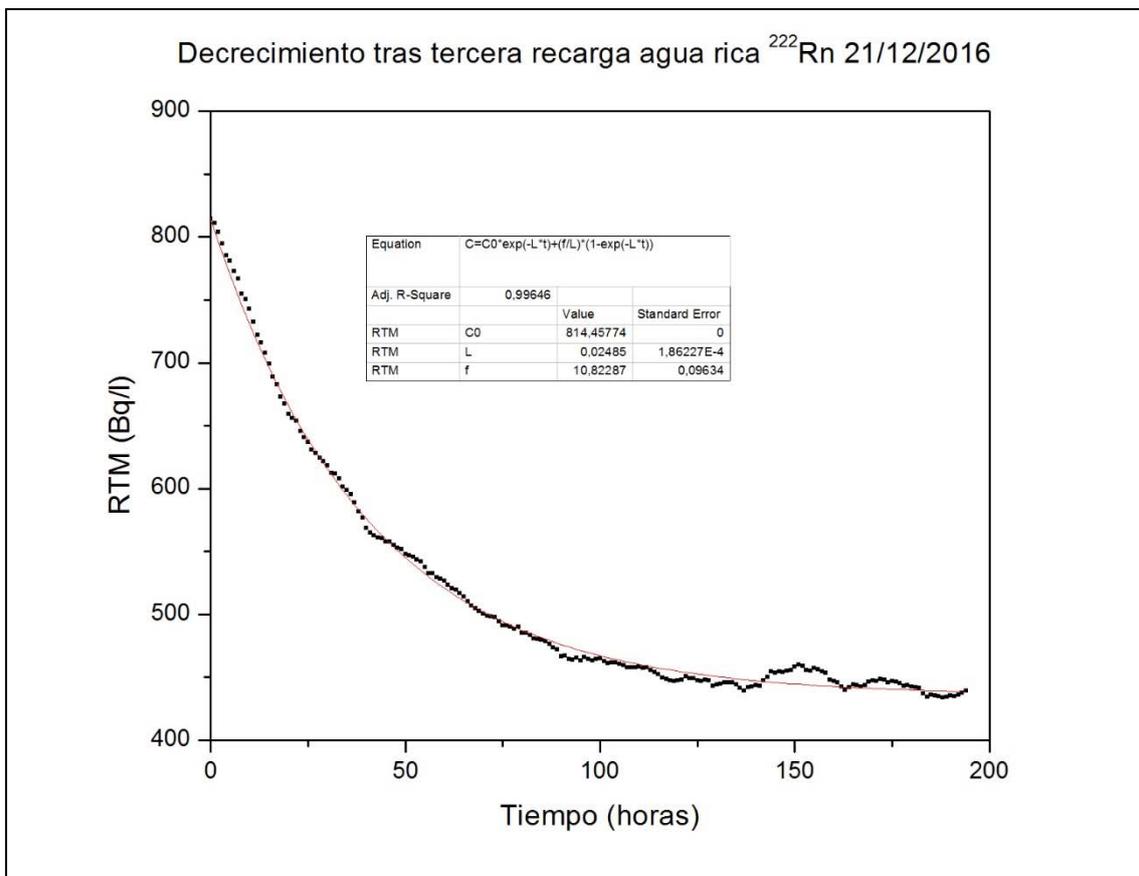


Fig.72: Representación gráfica del decrecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras la recarga con 44 l de agua rica en ^{222}Rn ($3130 \pm 128 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) junto con el ajuste realizado respecto al MCC.

En la **Fig.72** se representan los valores experimentales (puntos negros) registrados por el RTM durante las 200 h aproximadamente que tarda en estabilizarse la concentración de ^{222}Rn tras su recarga así como el ajuste de estos con respecto a la **Eq.48** que caracteriza el MCC (línea roja). El R-square obtenido en el ajuste es de 0.99 que vuelve a ser un valor muy bueno, y los parámetros obtenidos son:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 10.8 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.025 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 815 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

7.1.3 Experimento 3: descarga rápida y recarga progresiva

“Episodio 8”

En la **Fig.73**, se pueden ver los datos registrados por el RTM una vez comenzada la recarga del episodio 8 en el acuífero con agua del grifo, que comenzó el 28 de agosto del 2017 a las 09:00 h y finalizó alrededor de las 14:00 h. A los datos experimentales (puntos negros) representados en la **Fig.73** se les realiza un ajuste nuevamente respecto a la **Eq.51** del modelo MCA (línea roja) obteniendo un R-square de 0.95 que nuevamente implica un muy buen resultado. Para realizar este ajuste se fijó λ^* (**Eq.53**) al determinar λ con la **Fig.74** y λ_1 con la **Eq.54**. Los parámetros característicos resultantes de este ajuste son:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 13.6 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 0.089 \text{ h}^{-1} = \lambda + \lambda_1 = 0.023 + 0.066 \\ C_0 = 279 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

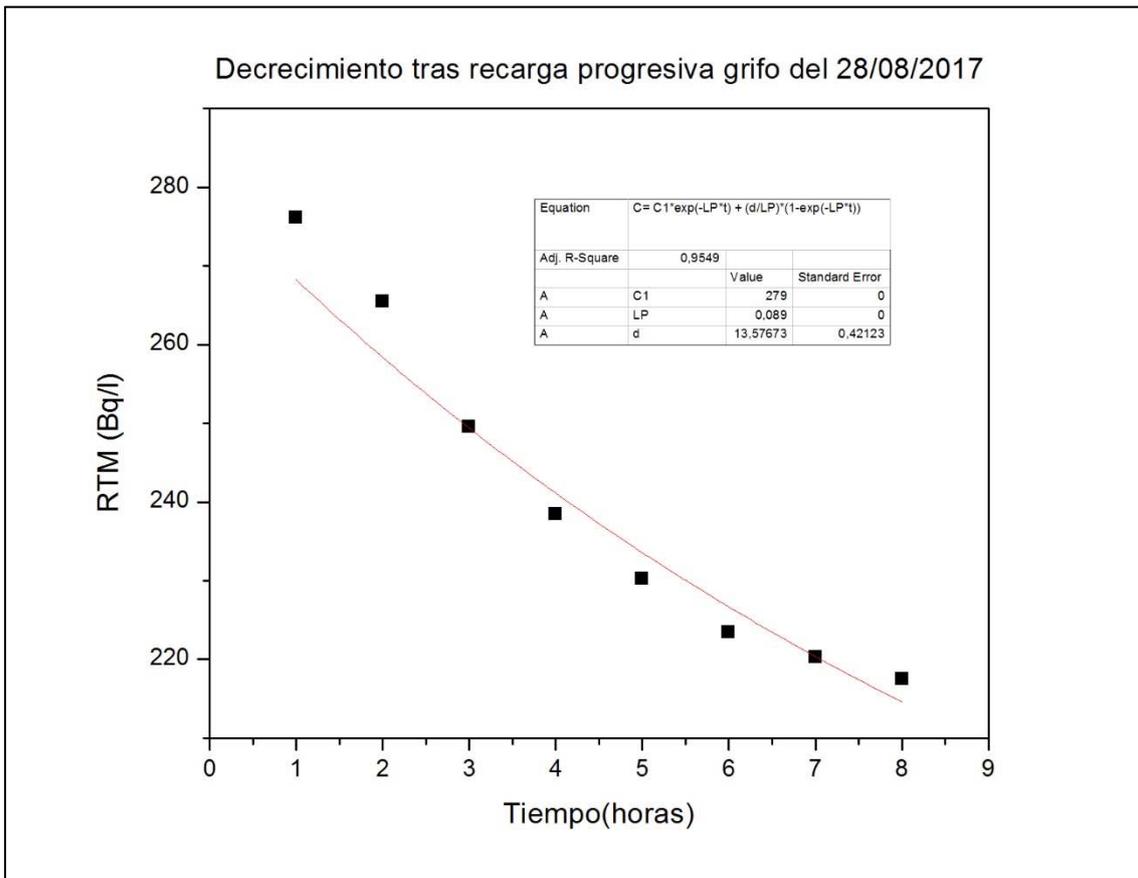


Fig.73: Representación gráfica del decrecimiento de ^{222}Rn tras la recarga progresiva de 24 l con agua del grifo experimentado por el acuífero simulado junto con el ajuste realizado respecto al MCA.

Transcurridas cerca de 60 h desde la realización de la nueva recarga con agua del grifo, la concentración de ^{222}Rn vuelve a alcanzar su valor de equilibrio en el acuífero con valores cercanos a los $280 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$. Este valor resulta bastante inferior al valor de equilibrio alcanzado en el origen del experimento (1 año antes) fruto de la humidificación que sufre la tierra, que origina su apelmazamiento y disminuye consecuentemente su poder de exhalación.

En esta ocasión, se puede observar en la **Fig.74** el ajuste (línea roja) de los datos experimentales (puntos negros) obtenidos respecto a la **Eq.48** del MCC, lográndose nuevamente un muy buen valor del R-square: 0.97.

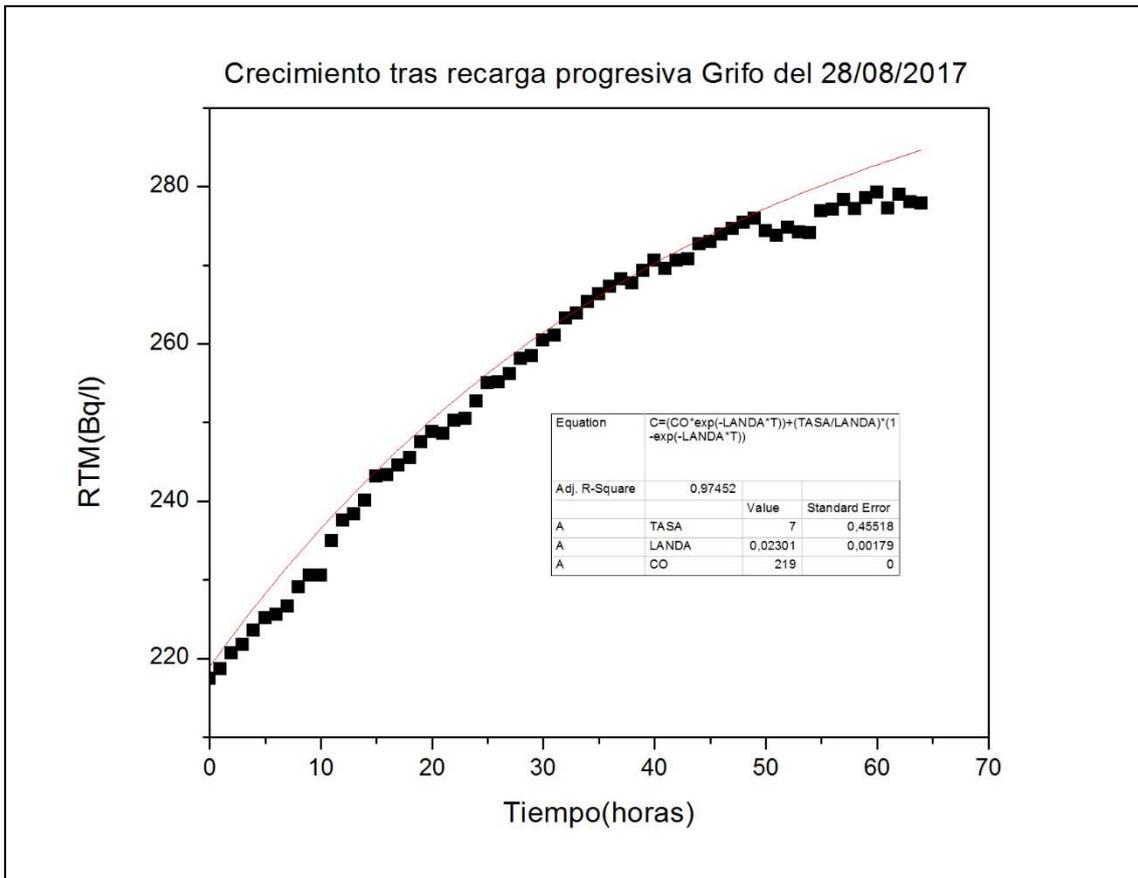


Fig.74: Representación gráfica del crecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero simulado tras el decrecimiento provocado por la recarga ($4.8 \text{ l} \cdot \text{h}^{-1}$) con agua del grifo (24 l) experimentado por el acuífero junto con el ajuste realizado respecto al MCC.

Los parámetros característicos obtenidos del ajuste realizado a este **episodio 8** de recarga con agua del grifo en la **Fig.74** son:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 7.0 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.023 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 219 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

Una vez estabilizado el valor cerca de los $280 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ al cabo de unas 60 h, se procede a la nueva recarga, esta vez con agua cargada de ^{222}Rn (**episodio 9**).

“Episodio 9”

En la **Fig.75** se puede ver la evolución que experimenta el ^{222}Rn tras la lenta recarga realizada, donde nuevamente en apenas 5 h vuelve a alcanzarse el valor máximo esta vez alrededor de 700 $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. Este valor máximo es inferior a las experiencias anteriores como consecuencia de las nuevas condiciones que presenta la tierra utilizada como fuente de exhalación, así como de la recarga progresiva frente a las recargas rápidas utilizadas en las experiencias anteriores.

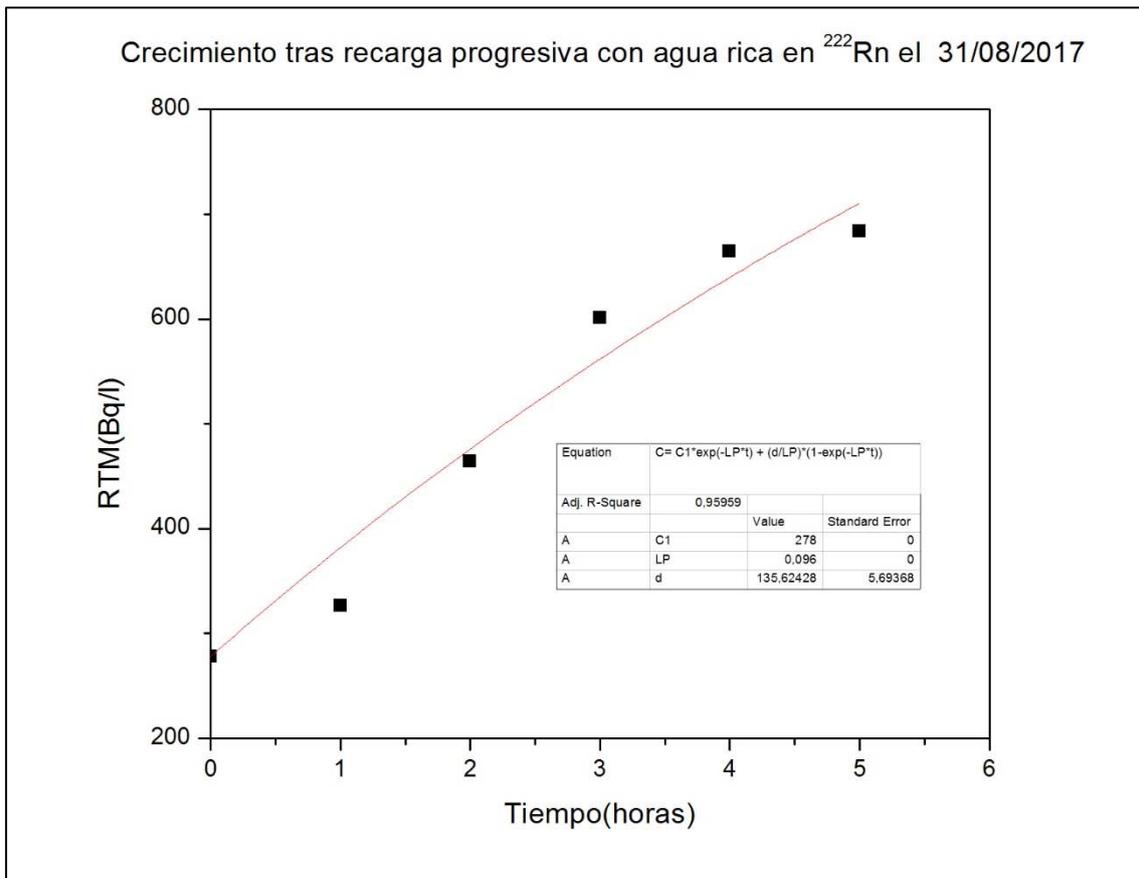


Fig.75: Representación gráfica del crecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras la recarga progresiva ($4.8 \text{ l}\cdot\text{h}^{-1}$) con 24 l de agua rica en ^{222}Rn ($4771 \pm 192 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) junto con el ajuste realizado respecto al MCA.

Los valores experimentales registrados cada hora por el RTM una vez comenzada la recarga, son los puntos negros de la **Fig.75**, mientras que la línea roja representa el ajuste realizado a estos datos experimentales respecto a la **Eq.51** del MCA. Para realizar este ajuste, se fijó λ^* (**Eq.53**) al determinar λ con la **Fig.76** y λ_i con la **Eq.54**. En esta ocasión el valor del R-square obtenido en este ajuste es de 0.96, resultando altamente satisfactorio junto con los parámetros característicos obtenidos:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 135.6 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 0.096 \text{ h}^{-1} = \lambda + \lambda_1 = 0.030 + 0.066 \\ C_0 = 278 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

Una vez alcanzado el valor máximo registrado por el RTM en $689 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ a las 5 h de comenzar el proceso de recarga, la concentración de ^{222}Rn comienza a decaer tal como puede apreciarse en la **Fig.76**.

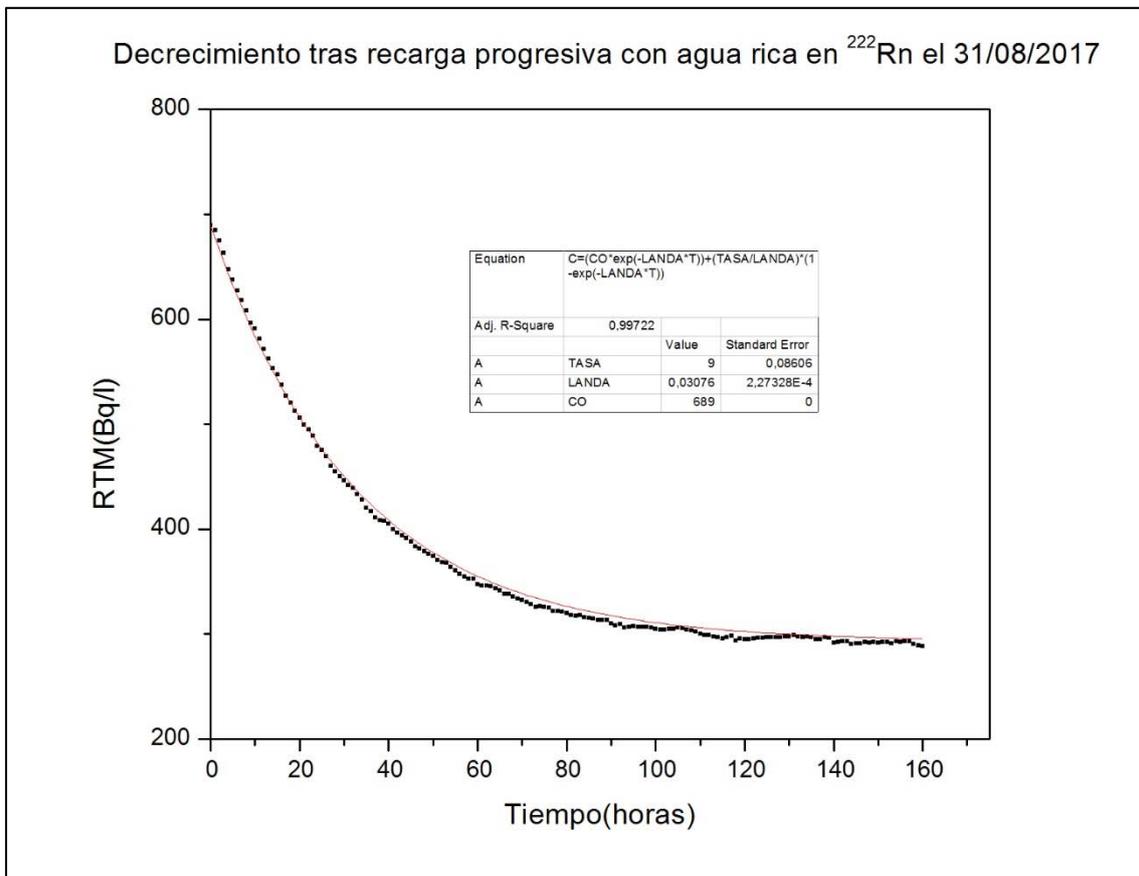


Fig.76: Representación gráfica del decrecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras la recarga del episodio 9 con 24 l de agua rica en ^{222}Rn ($4771 \pm 192 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) junto con el ajuste realizado respecto al MCC.

En la **Fig.76**, se representan mediante puntos negros los valores experimentales registrados por el RTM durante las 160 h aproximadamente que tarda en estabilizarse la concentración de ^{222}Rn tras su recarga. El ajuste de estos valores experimentales con respecto a la **Eq.48** que caracteriza el MCC se representa mediante una línea roja. El R-square obtenido en este ajuste es de 0.99 que vuelve a ser un valor extremadamente bueno, y los parámetros característicos obtenidos son:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 9.0 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.030 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 689 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

7.1.4 Experimento 4: descarga y recarga progresivas

Resulta necesario recordar que en este nuevo experimento se decidió realizar la descarga junto con la recarga de forma progresiva y simultánea, de forma que el acuífero se descarga con el mismo caudal que se está recargando con el objetivo de mantener constante en el tiempo el volumen del acuífero.

“Episodio 10”

En esta ocasión, tanto la descarga como la recarga con un volumen de 24 l comienzan el 07/09/2017 a las 9:45 h y terminan a las 16:50 h. En la **Fig.77** se pueden observar las concentraciones registradas por el RTM una vez comenzada la recarga del acuífero con agua del grifo, realizada en esta ocasión de forma simultánea con la descarga. A los datos experimentales representados por los puntos negros se les realiza un ajuste respecto a la **Eq.51** del modelo MCA (línea roja) logrando un muy buen valor de R-square de 0.98. Para realizar este ajuste nuevamente se fija λ^* (**Eq.53**) al determinar λ con la **Fig.78** y λ_i con la **Eq.54**.

Los parámetros característicos resultantes de este ajuste son:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 7.6 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 0.064 \text{ h}^{-1} = \lambda + \lambda_i = 0.017 + 0.047 \\ C_0 = 287 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

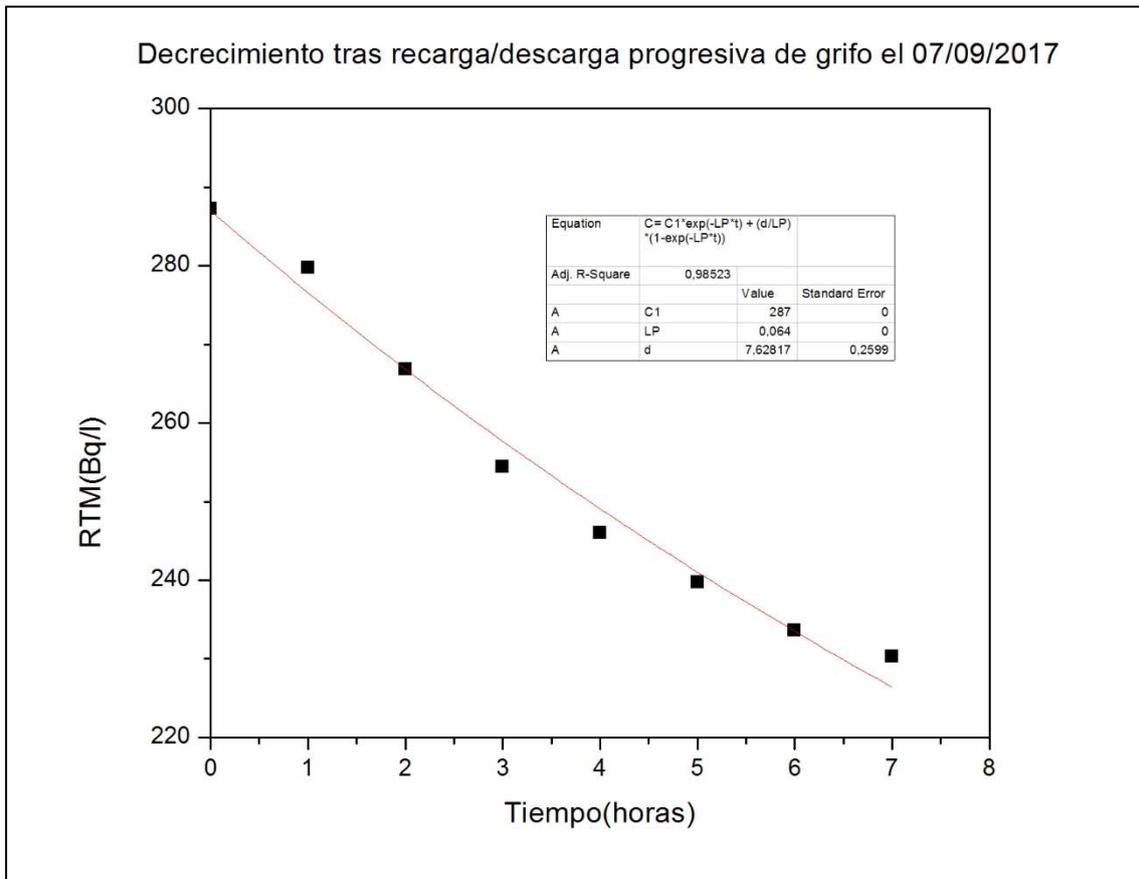


Fig.77: Representación gráfica del decrecimiento de ^{222}Rn tras la recarga y descarga simultáneas de 24 l con agua del grifo experimentado por el acuífero junto con el ajuste realizado respecto al MCA.

A partir de las 7 h transcurridas desde el inicio de la operación de recarga/descarga, la concentración de ^{222}Rn en el agua vuelve a aumentar como puede verse en la **Fig.78** donde transcurrido cerca de 50 h la concentración vuelve a alcanzar su valor de equilibrio en el acuífero con valores cercanos a los $280 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. En esta **Fig.78** se puede ver el ajuste (línea roja) realizado a los datos experimentales (puntos negros) respecto a la **Eq.48** del MCC, lográndose nuevamente un muy buen valor del R-square: 0.99. Los parámetros característicos resultantes de este ajuste son:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 5.1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.017 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 230 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

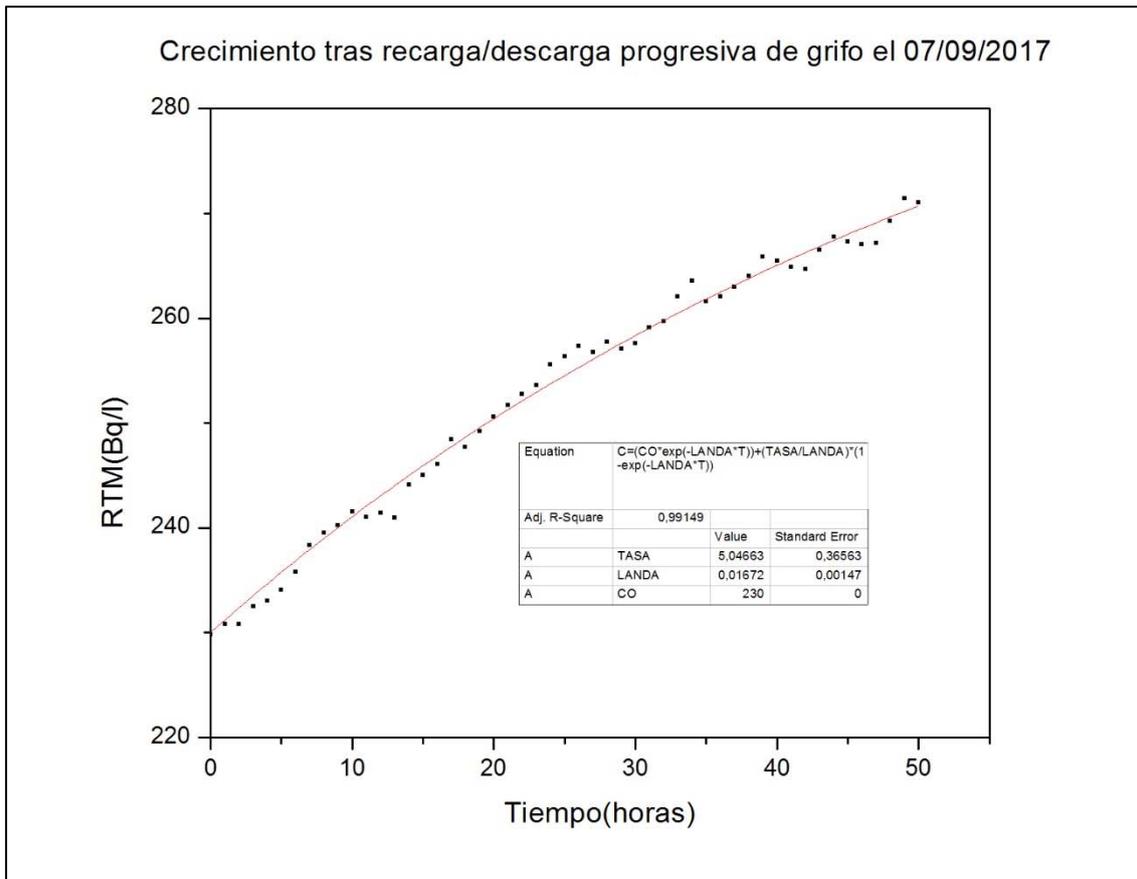


Fig.78: Representación gráfica del crecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras el decrecimiento provocado por la recarga/descarga simultáneas ($3.4 \text{ l} \cdot \text{h}^{-1}$) con agua del grifo (24 l) experimentado por el acuífero simulado junto con el ajuste realizado respecto al MCC.

Una vez estabilizado el valor de la concentración de ^{222}Rn cerca de los $280 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ se procede a la nueva recarga/descarga simultáneas pero en esta ocasión con agua rica en ^{222}Rn (**episodio 11**).

“Episodio 11”

En la **Fig.79** se observa la evolución que experimenta la concentración de ^{222}Rn en el agua del acuífero tras la recarga/descarga simultáneas realizadas con un caudal de $3.6 \text{ l} \cdot \text{h}^{-1}$. Tal como se ve gráficamente, en apenas 4 h vuelve a alcanzarse el valor máximo esta vez alrededor de $620 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$. Este valor máximo resulta ligeramente inferior al alcanzado en el **episodio 9** a pesar de utilizar un agua de alimentación con una concentración similar (aproximadamente $4700 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$) como consecuencia de las distintas condiciones en las descargas de ambas experiencias.

Los puntos negros de la **Fig.79** representan los valores experimentales registrados por el RTM cada hora una vez comenzada la recarga, mientras que la línea roja representa el ajuste realizado a estos datos experimentales respecto a la **Eq.51** del MCA. En esta experiencia el valor del R-square obtenido es de 0.96. Para realizar este ajuste nuevamente se fija λ^* (**Eq.53**) al determinar λ con la **Fig.80** y λ_1 con la **Eq.54**.

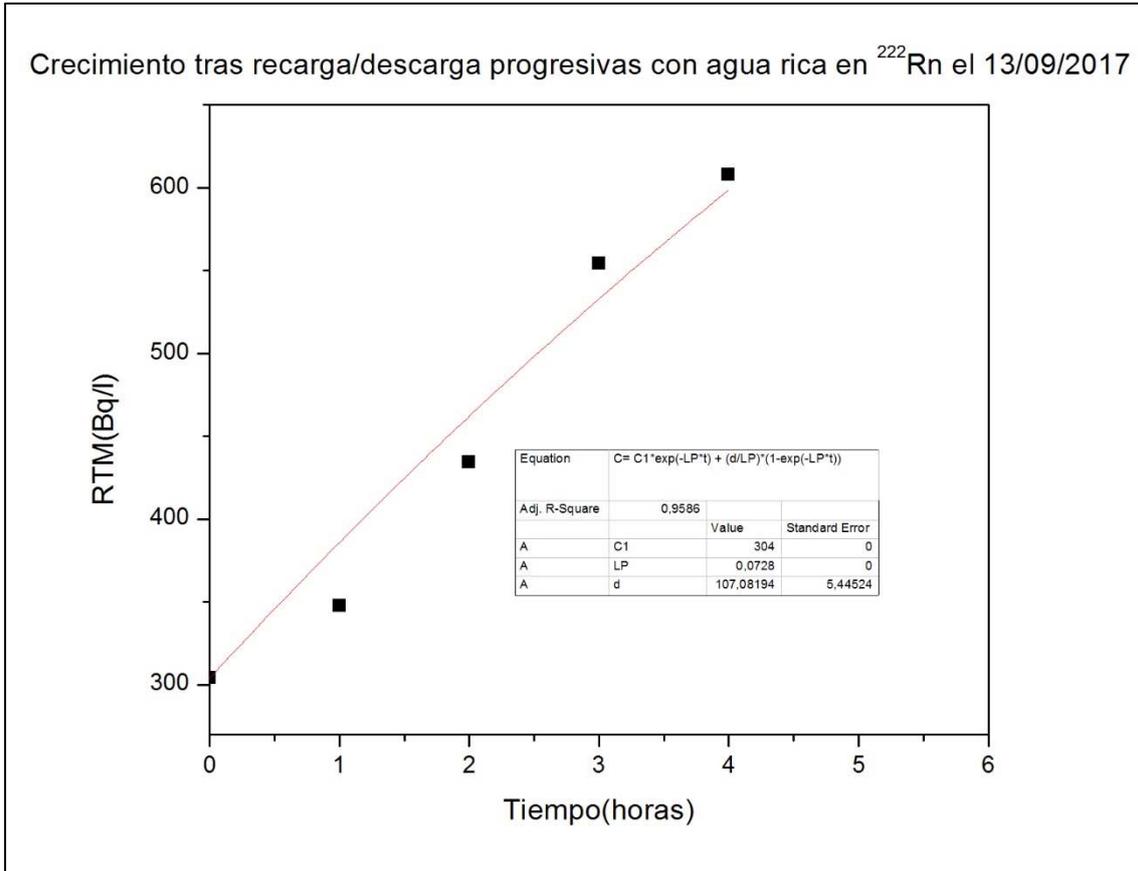


Fig.79: Representación gráfica del crecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras la recarga/descarga simultáneas ($3.6 \text{ l}\cdot\text{h}^{-1}$) con 24 l de agua rica en ^{222}Rn ($4733 \pm 191 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) junto con el ajuste realizado respecto al MCA.

Los parámetros característicos del ajuste realizado en la **Fig.79** son:

$$\left\{ \begin{array}{l} d= 107.1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^*= 0.073 \text{ h}^{-1} = \lambda + \lambda_1 = 0.023 + 0.050 \\ C_0= 304 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

Una vez registrado el valor máximo por el RTM en $620 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ a las 4 h de comenzar el proceso de recarga, la concentración de ^{222}Rn comienza a decaer tal como puede apreciarse en la **Fig.80**.

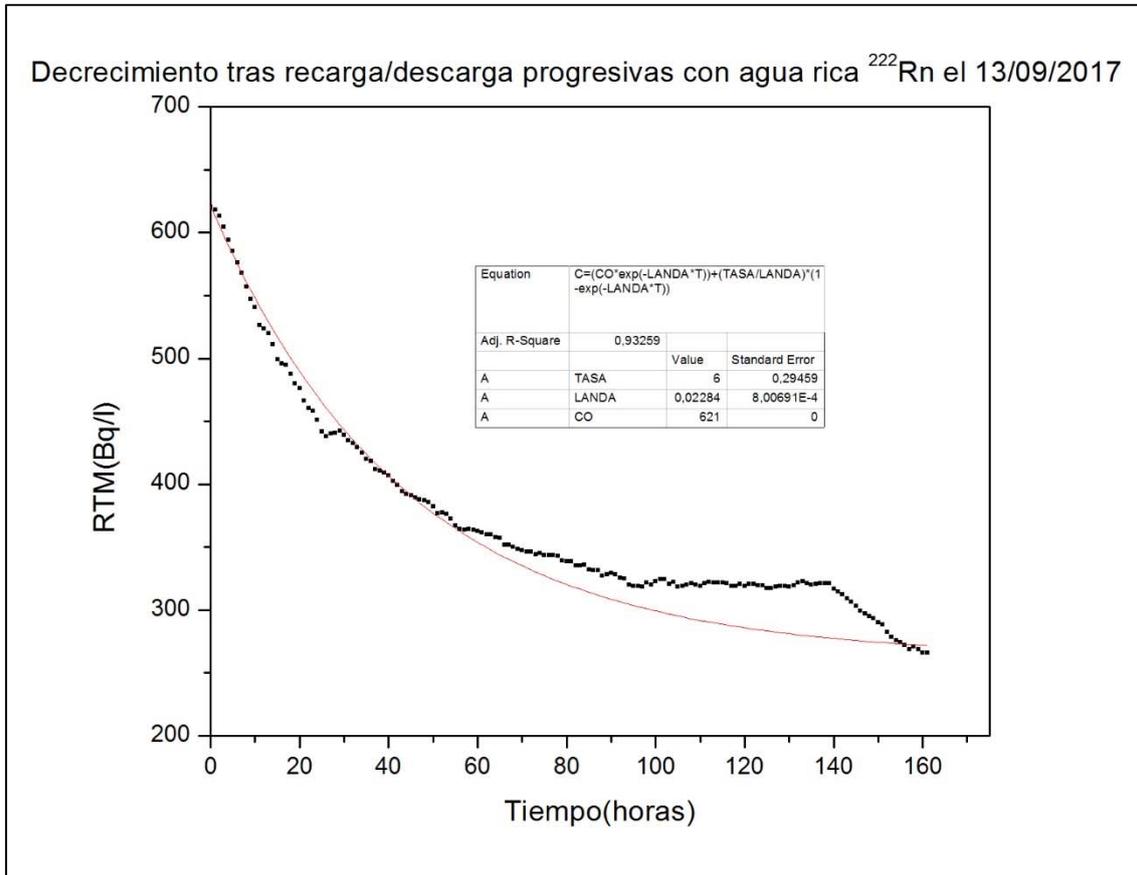


Fig.80: Representación gráfica del decrecimiento de ^{222}Rn que experimenta el acuífero tras el crecimiento provocado por la recarga/descarga simultáneas ($3.6 \text{ l}\cdot\text{h}^{-1}$) con agua rica en ^{222}Rn (24 l) junto con el ajuste realizado respecto al MCC.

El resultado del ajuste realizado a los valores experimentales registrados por el RTM en la **Fig.80** es la línea de color rojo. Los parámetros característicos resultantes de este buen ajuste con un R-square de 0.93 son:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 6.0 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.023 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 621 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

El estudio de los procesos de recarga simulados con agua de lluvia y con agua subterránea en el acuífero simulado, han permitido la obtención de los parámetros característicos de cada episodio según se apliquen los modelos MCC o MCA, y que se analizarán en el próximo capítulo de análisis de resultados. Previamente es necesario aplicar estos modelos matemáticos a un caso de acuífero real: El Balneario de Las Caldas de Besaya.

7.2 Resultados en el caso real: Las Caldas de Besaya

7.2.1 1^{ra} Recarga: Marzo 2012.

El primer episodio de recarga estudiado fue el que corresponde a marzo del 2012. La fecha de control fue desde las 10:50 h del 10 de marzo hasta las 05:50 h del 11 de marzo. En la **Fig.81** se pueden ver los registros que presenta el RTM cuando el pozo principal está sin abastecimiento del pozo exterior, y consecuentemente la concentración de ^{222}Rn aumenta hasta alcanzar un valor de equilibrio entorno a los $700 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.

En esta **Fig.81**, se realiza un ajuste (línea roja) de los valores experimentales (puntos negros) respecto a la **Eq.48** del MCC obteniéndose de igual forma que sucedía con el acuífero simulado un valor de R-square bastante bueno (0.99).

Los parámetros obtenidos del ajuste realizado respecto al MCC fueron:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 312.5 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.440 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 316 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

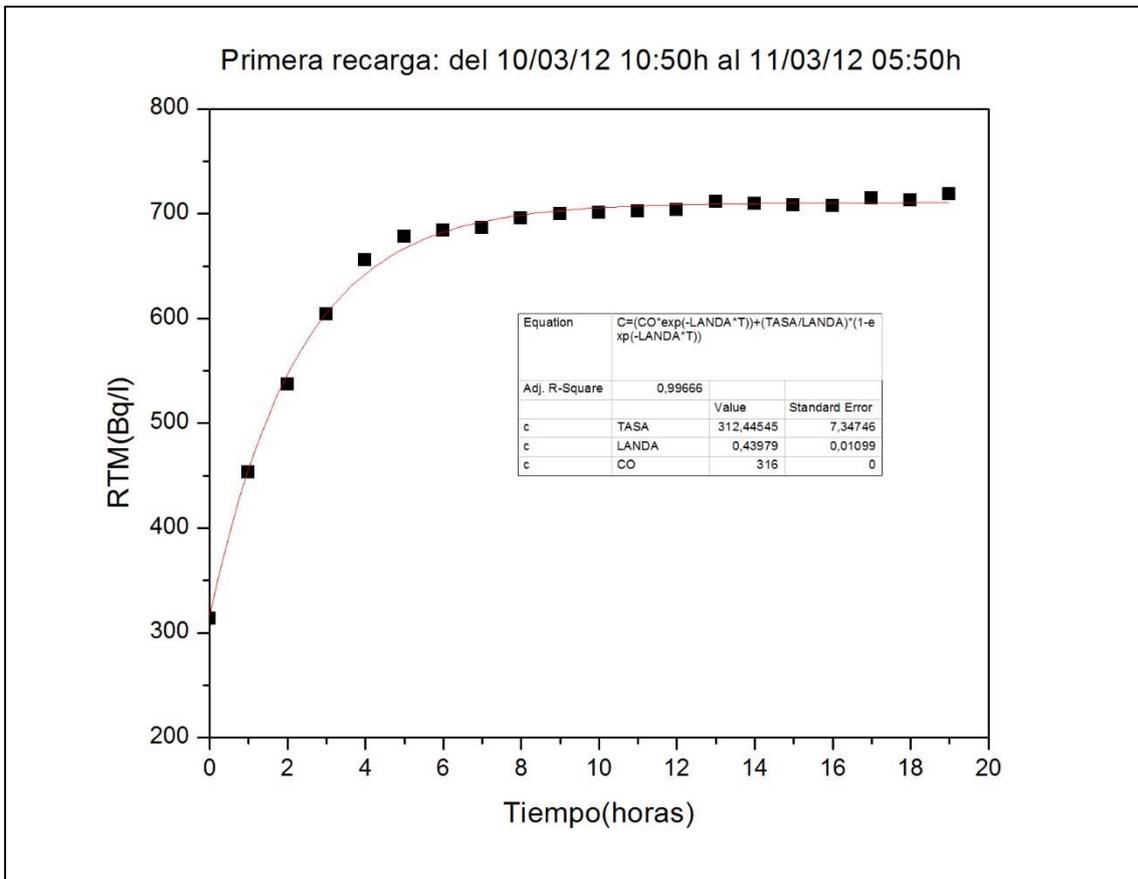


Fig.81: Crecimiento de la concentración de ^{222}Rn en el agua del Balneario junto con el ajuste respecto al MCC en la primera recarga analizada entre el 10 y 11 de marzo.

Una vez comienza el bombeo de agua desde el Pozo Exterior a las 6 de la mañana, el agua con menor concentración de ^{222}Rn comienza a llegar al Pozo Principal y la concentración de ^{222}Rn en el agua de estudio comienza a disminuir tal y como se puede ver en la **Fig.82**. En esta figura se representan los valores registrados por el RTM (puntos negros) el 11 de marzo desde las 06:50 h a las 11:50 h junto al ajuste (línea roja) que se realiza respecto a la **Eq.51** del MCA. El valor R-square obtenido es 0.99.

Los parámetros de interés en este ajuste respecto al MCA fueron:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 453.5 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 0.764 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 691 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

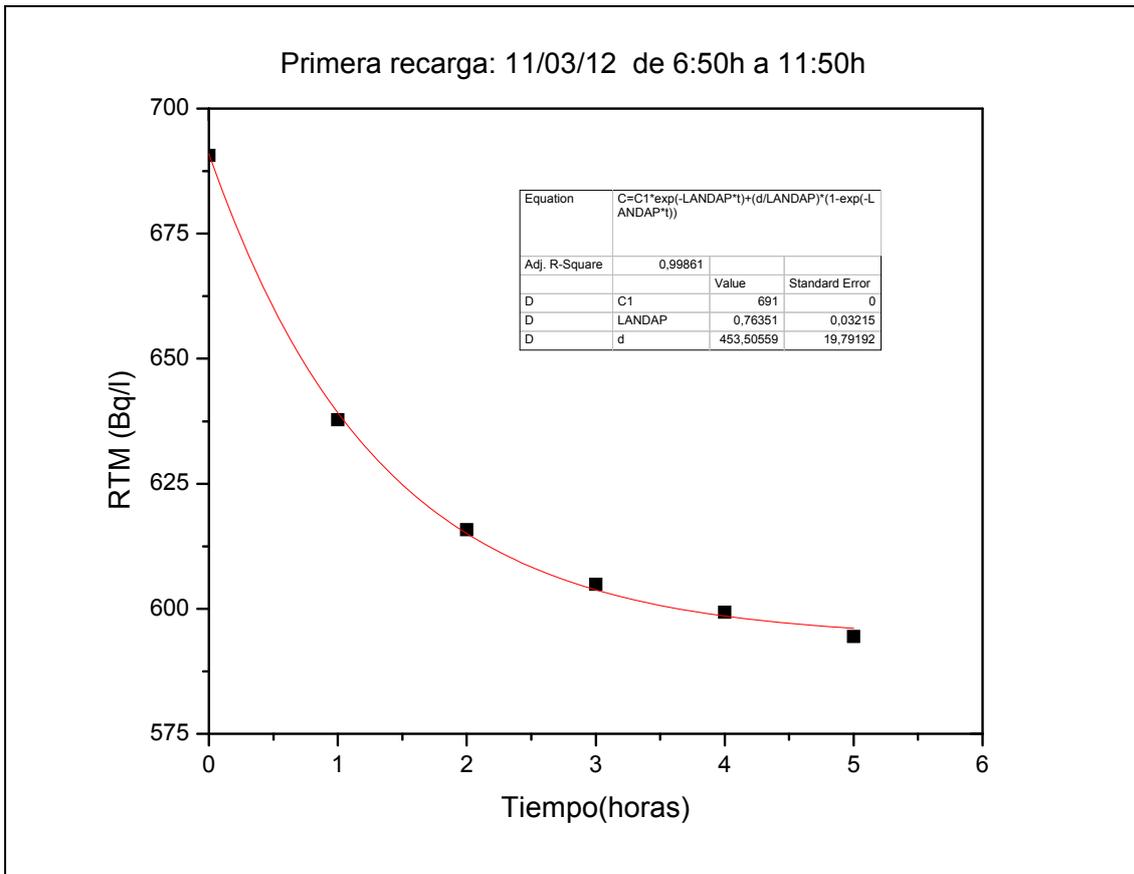


Fig.82: Decrecimiento de la concentración de ^{222}Rn en el agua del Balneario junto con el ajuste respecto al MCA en la primera recarga analizada entre el 10 y 11 de marzo.

7.2.2 2^{da} Recarga: Abril 2012

El segundo episodio de recarga analizado corresponde al mes de abril. La fecha de control transcurrió desde las 11:03 h del 25 de abril hasta las 05:03 h del 26 de abril. En la **Fig.83** se representan los valores experimentales (puntos negros) registrados por el RTM que coinciden con el tiempo en que el Pozo Principal está sin abastecimiento del Pozo Exterior, y en consecuencia la concentración de ^{222}Rn va aumentando hasta alcanzar un valor estable entorno a los 700 Bq·l⁻¹.

En la **Fig.83**, se realiza un ajuste (línea roja) respecto a la **Eq.48** del MCC obteniéndose un valor de R-square bastante bueno (0.96).

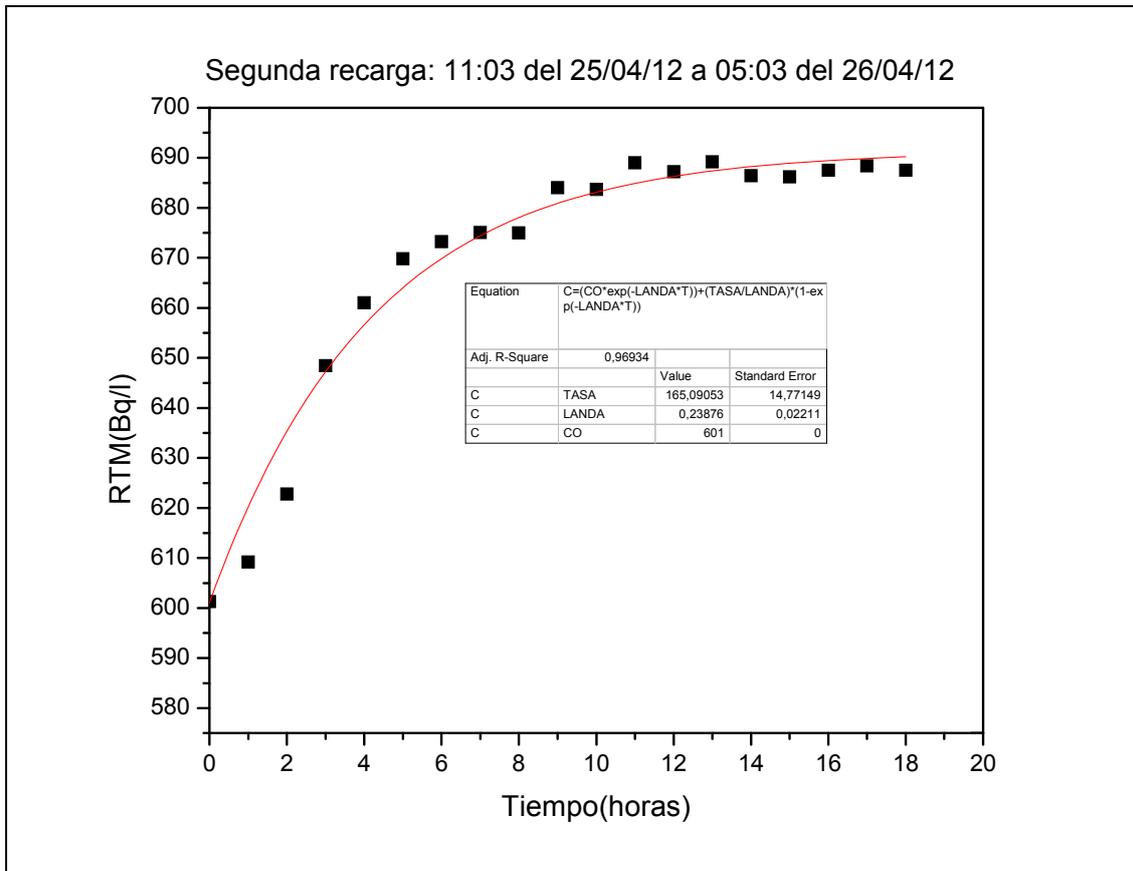


Fig.83: Crecimiento de la concentración de ^{222}Rn en el agua del Balneario junto con el ajuste respecto al MCC en la segunda recarga analizada entre el 25 y 26 de abril.

Los parámetros que se obtienen del ajuste realizado respecto al MCC han sido:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 165.1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.239 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 601 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

Una vez comienza la actividad del Balneario con el bombeo a las 6:00 h desde el Pozo Exterior al Pozo Principal la actividad de ^{222}Rn decrece tal como puede observarse en la **Fig.84**.

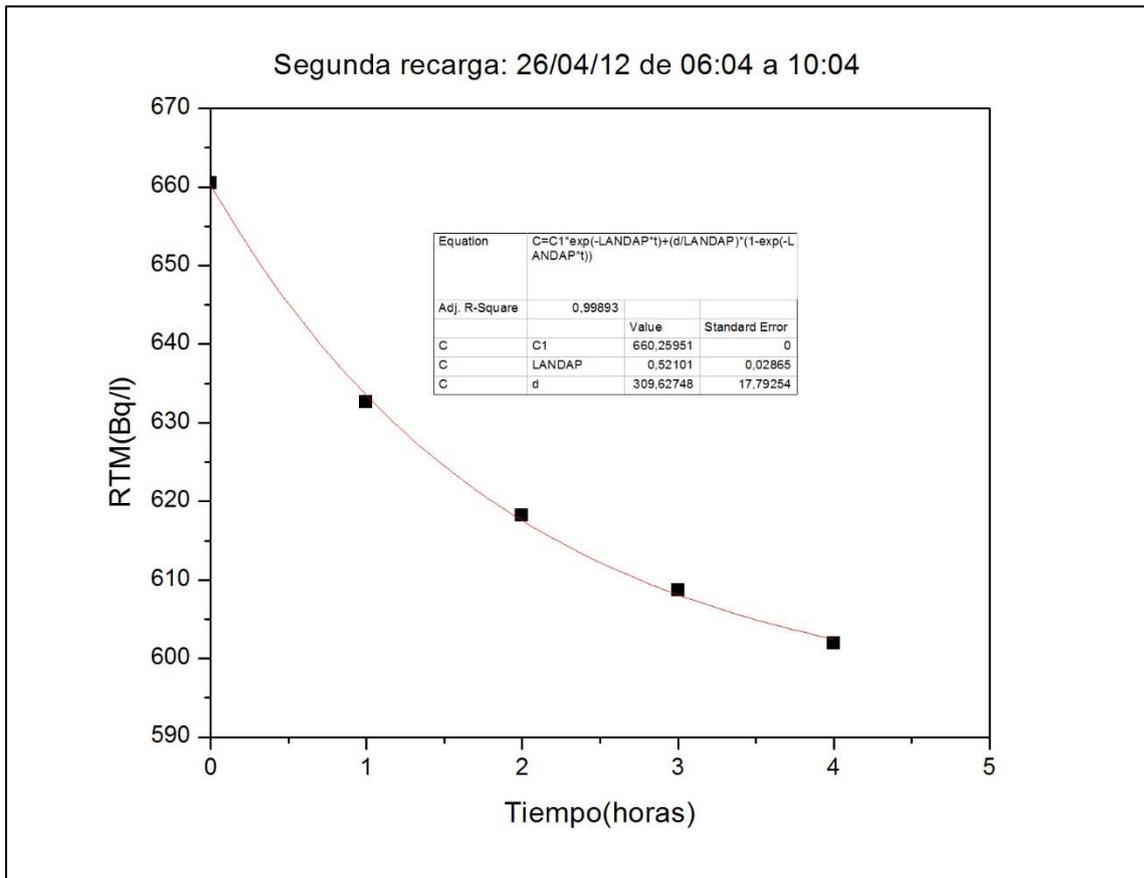


Fig.84: Decrecimiento de la concentración de ^{222}Rn en el agua del Balneario junto con el ajuste respecto al MCA en la segunda recarga analizada entre el 25 y 26 de abril.

El ajuste (línea roja) que se realiza respecto a la **Eq.51** del MCA de los valores experimentales registrados por el RTM durante el tiempo de funcionamiento de la bomba da lugar a un muy buen valor de R-square (0.99) y unos parámetros característicos que son:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 309.6 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 0.521 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 660 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

Como se observó en el anterior episodio de recarga, la concentración de ^{222}Rn disminuye hasta un valor próximo a los $600 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ antes de detenerse nuevamente el bombeo y comenzar el nuevo ciclo diario de crecimiento de ^{222}Rn en el Pozo Principal.

7.2.3 3^{ra} Recarga: Mayo 2012

El tercer episodio de recarga analizado corresponde al mes de mayo. Este episodio de control transcurrió desde las 11:12 h del 13 de mayo hasta las 05:12 h del 14 de mayo. En la **Fig.85** se pueden ver representados los valores experimentales (puntos negros) registrados por el RTM. En esta figura se observa el crecimiento diario que experimenta el ^{222}Rn durante el periodo en el que no está funcionando la bomba del Pozo exterior hasta alcanzar un valor cercano a los 700 $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.

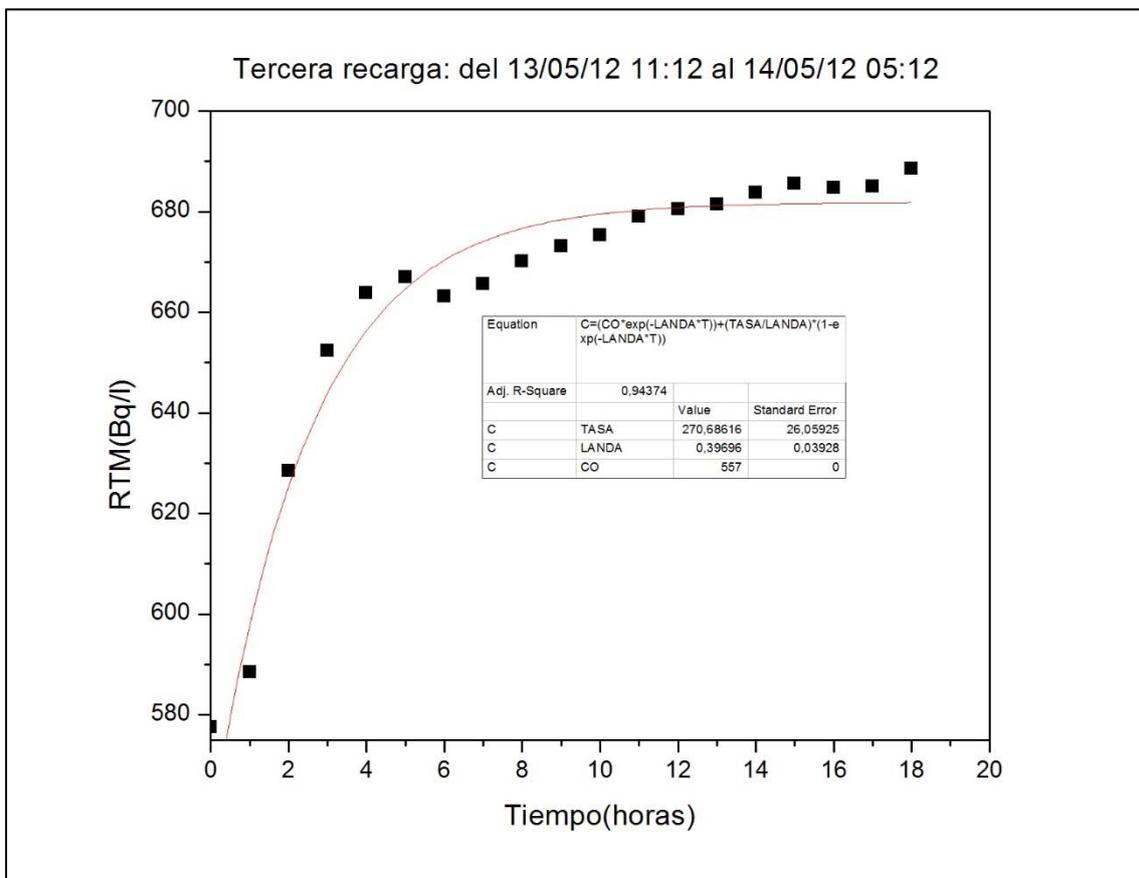


Fig.85: Crecimiento de la concentración de ^{222}Rn en el agua del Balneario junto con el ajuste respecto al MCC en la tercera recarga analizada entre el 13 y 14 de mayo.

Como resultado del ajuste (línea roja) realizado a los valores experimentales respecto a la **Eq.48** del MCC con un R-square de 0.94 se obtienen los siguientes parámetros característicos:

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 270.7 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.397 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 557 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

La **Fig.86** muestra la evolución de la concentración de ^{222}Rn una vez entra en funcionamiento el bombeo del Pozo Exterior, y como era de esperar se observa un decrecimiento hasta alcanzar un valor mínimo entorno a $580 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$.

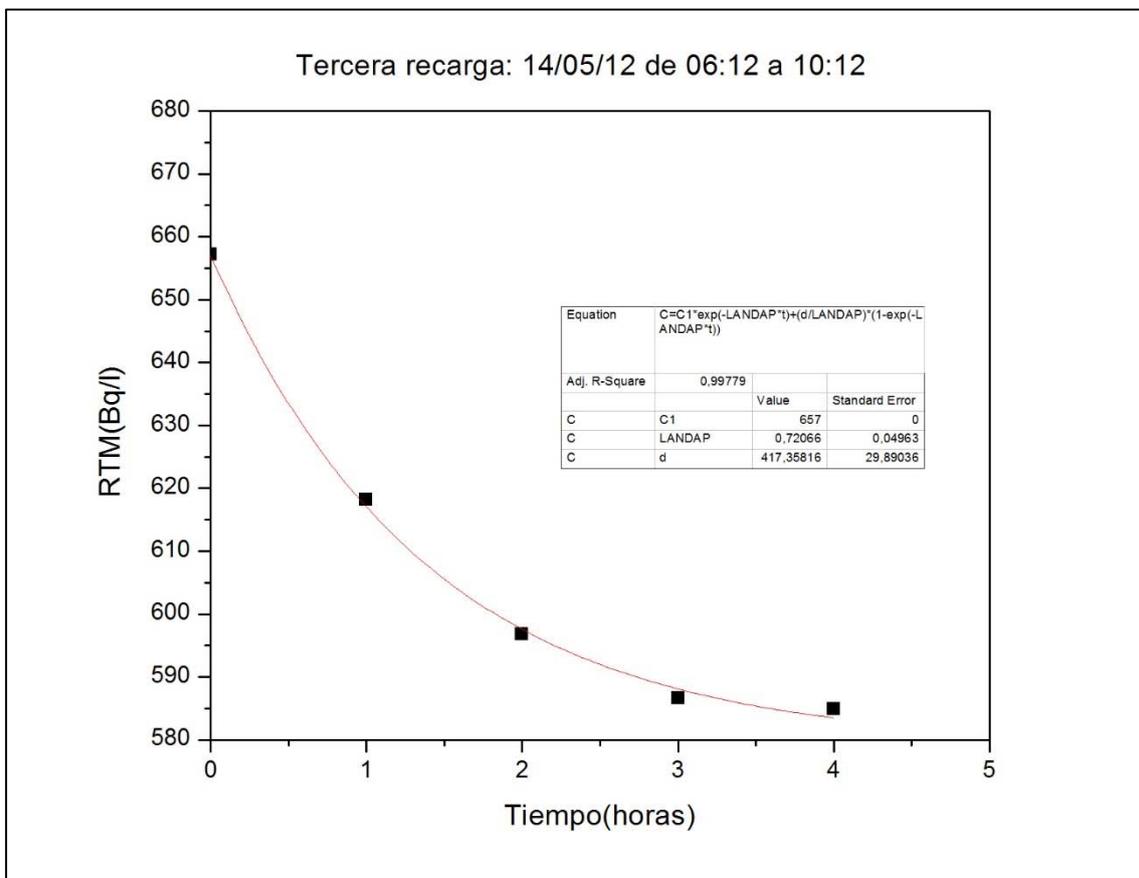


Fig.86: Decrecimiento de la concentración de ^{222}Rn en el agua del Balneario junto con el ajuste respecto al MCA en la tercera recarga analizada entre el 13 y 14 de mayo.

En esta **Fig.86** se representan los valores registrados por el RTM (puntos negros) el 14 de mayo desde las 06:12 h a las 10:12 h junto al ajuste (línea roja) que se realiza respecto a la **Eq.51** del MCA con un valor obtenido del R-square de 0.99. Los parámetros de interés en este ajuste fueron:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 417.4 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 0.721 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 657 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

7.2.4 4^{ta} Recarga: Junio 2012

El cuarto episodio de recarga que se analiza corresponde al mes de junio que tuvo lugar entre las 11:12 h del 19 de junio y las 05:12 h del 20 de junio. En la **Fig.87** se pueden observar los valores experimentales (puntos negros) registrados por el RTM durante este periodo de parada de la bomba.

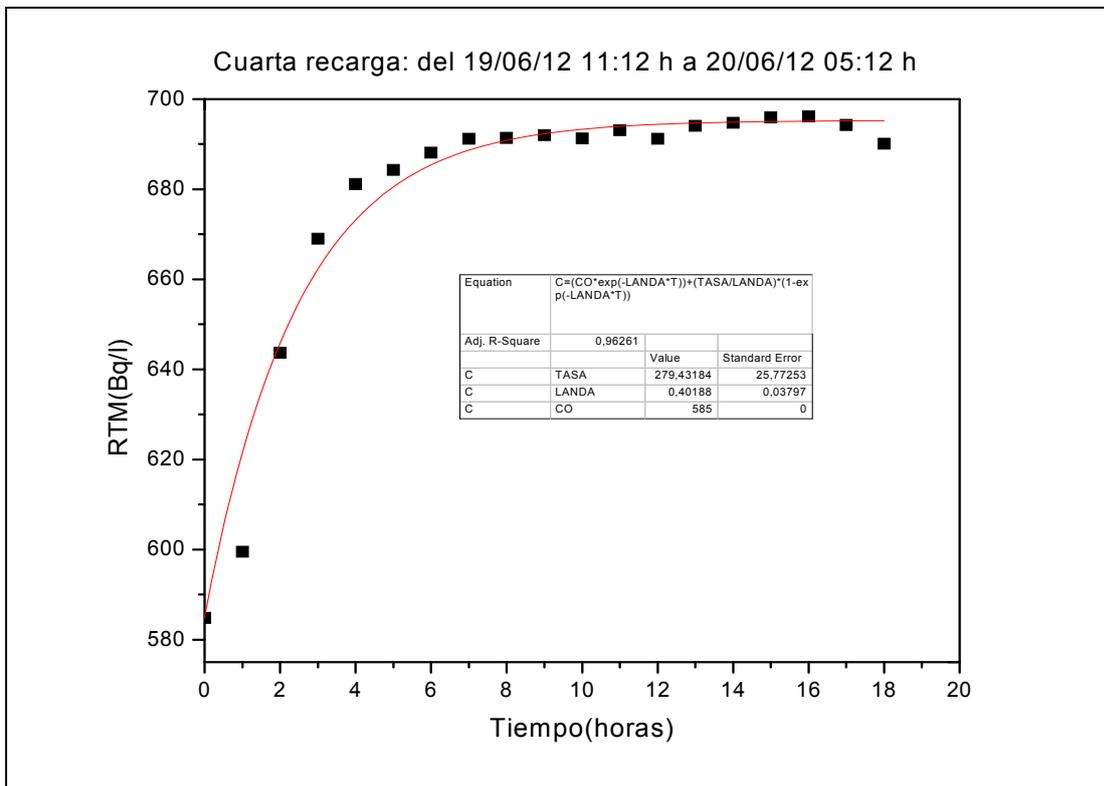


Fig.87: Crecimiento de la concentración de ^{222}Rn en el agua del Balneario junto con el ajuste respecto al MCC en la cuarta recarga analizada entre el 19 y 20 de junio.

El crecimiento diario que experimenta el ^{222}Rn durante el periodo en el que no está funcionando la bomba del Pozo Exterior vuelve a alcanzar un valor cercano a los 700 $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. En la **Fig.87** también se puede ver el ajuste (línea roja) que se realiza a los valores experimentales respecto a la **Eq.48** del MCC con un R-square de 0.96 obteniéndose como parámetros característicos del modelo:

$$\left. \begin{array}{l} \phi = 279.4 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.402 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 585 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right\}$$

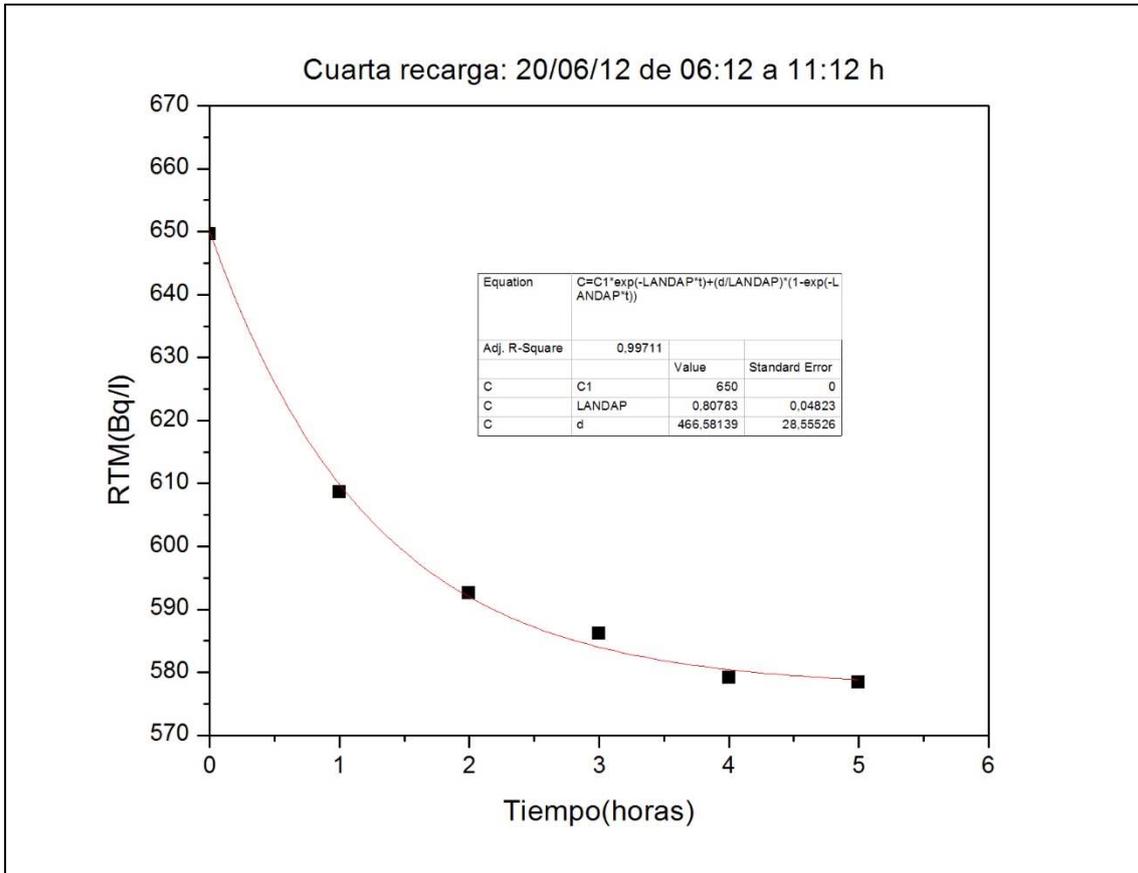


Fig.88: Decrecimiento de la concentración de ^{222}Rn en el agua del Balneario junto con el ajuste respecto al MCA en la cuarta recarga analizada entre el 19 y 20 de junio.

Una vez que entra en funcionamiento la bomba del Pozo Exterior, la llegada de agua al Pozo Principal genera la pérdida de concentración de ^{222}Rn al estar recargando el Pozo Principal con agua con menor actividad de ^{222}Rn . Esta disminución de la concentración queda reflejada en la **Fig.88** donde partiendo de una concentración cercana a los $650 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ se llega casi al final del tiempo de bombeo a los $580 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ aproximadamente. La línea roja como en los casos anteriormente comentados representa el ajuste que se realiza de los datos experimentales frente a la **Eq.51** que modeliza al MCA, obteniéndose un R-square de 0.99 con unos parámetros característicos como son:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 466.6 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 0.808 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 650 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

7.2.5 5^{ta} Recarga: Julio 2012

El último episodio de recarga estudiado en el Balneario de Las Caldas de Besaya fue correspondiente al mes de julio, comenzando el día 7 a las 10:25 h y finalizando el día 8 a las 05:25 h. Este periodo de control, al igual que en los anteriores 4 episodios estudiados, se analizó en dos partes diferenciadas.

La primera parte, donde la concentración de ^{222}Rn se caracteriza por crecer durante el periodo de parada de la bomba. La **Fig.89** refleja perfectamente esta tendencia de crecimiento del ^{222}Rn en el Pozo Principal, lográndose además un muy buen valor del R-square (0.96) al ajustar los valores experimentales registrados por el RTM durante este episodio con respecto a la **Eq.48** que modeliza el MCC.

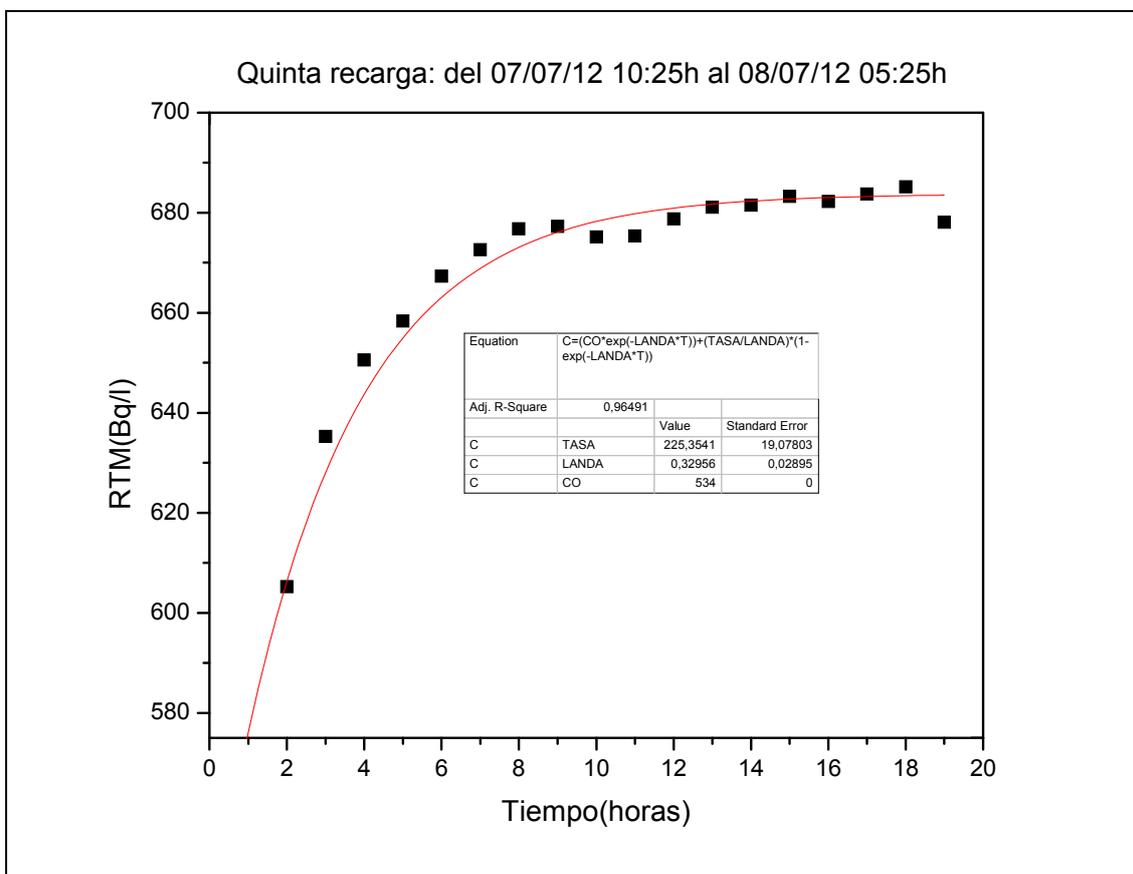


Fig.89: Crecimiento de la concentración de ^{222}Rn en el agua del Balneario junto con el ajuste respecto al MCC en la quinta recarga analizada entre el 7 y 8 de julio.

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi = 225.4 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda = 0.330 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 534 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

La segunda parte, que refleja el periodo de funcionamiento de la bomba, se caracteriza por la disminución de la concentración de ^{222}Rn en el agua del Pozo Principal tal como se puede ver en la **Fig.90**. El ajuste (línea roja) que se realiza con respecto a la expresión característica que modeliza el MCA obtiene un muy buen valor de R-square (0.99) con unos parámetros característicos:

$$\left\{ \begin{array}{l} d = 290.1 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1} \\ \lambda^* = 0.569 \text{ h}^{-1} \\ C_0 = 619 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \end{array} \right.$$

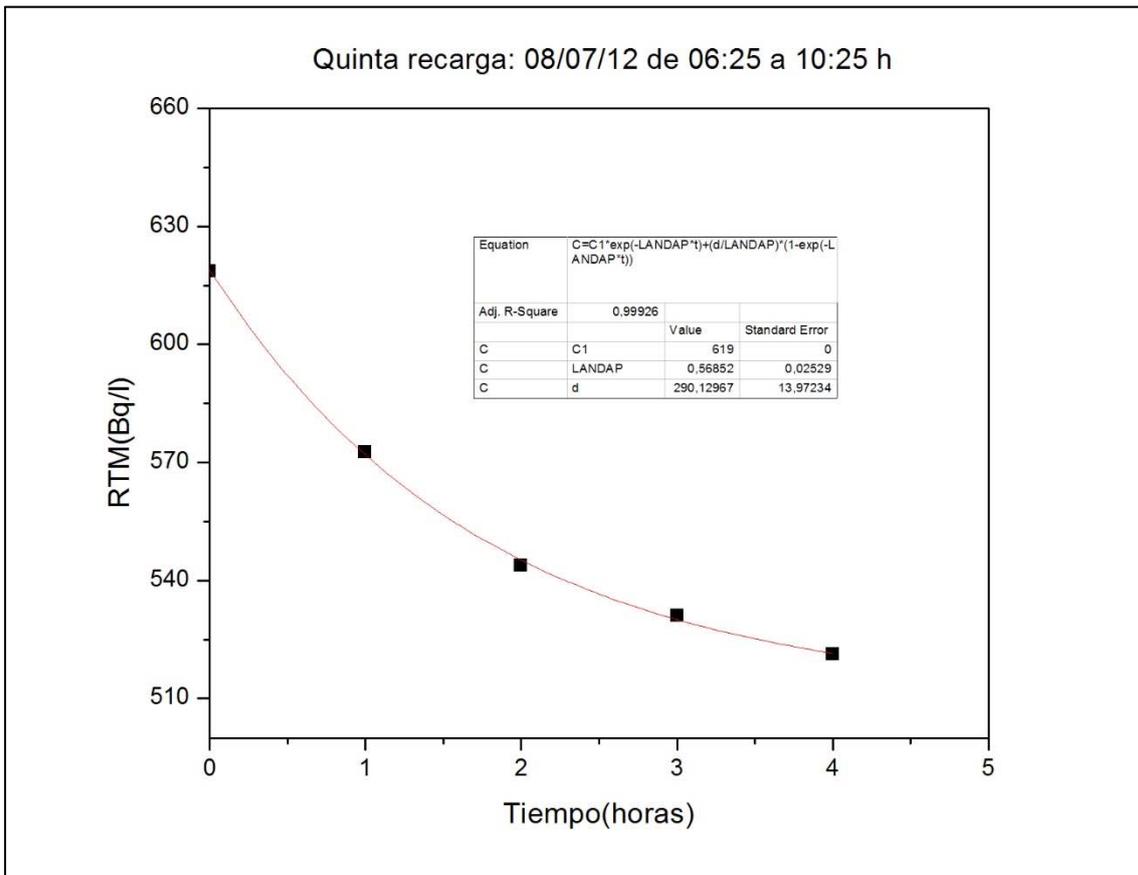


Fig.90: Decrecimiento de la concentración de ^{222}Rn en el agua del Balneario junto con el ajuste respecto al MCA en la quinta recarga analizada entre el 7 y 8 de julio.

CAPÍTULO

8 Análisis de los resultados

8.1 Acuífero simulado

8.1.1 Parámetros de los episodios analizados

8.1.2 Concentración de ^{222}Rn del agua de recarga

8.1.3 Análisis de los resultados

8.2 Balneario de Las Caldas de Besaya

8.2.1 Parámetros de los episodios analizados

8.2.2 Concentración de ^{222}Rn del agua de recarga

8.2.3 Análisis de los resultados

En este **Capítulo 8** se analizan los resultados obtenidos al modelizar los episodios de recarga tanto del acuífero simulado como del acuífero del Balneario de Las Caldas de Besaya (MCC y MCA), además de determinar el resto de parámetros que faltan para caracterizar completamente los sistemas estudiados, como son: λ_v , λ_l y C^* .

8.1 Acuífero simulado

A continuación se presentan los resultados obtenidos en los 10 episodios de recarga/descarga realizados en el acuífero simulado, 5 de ellos con agua del grifo y los otros 5 con agua rica en ^{222}Rn .

8.1.1 Parámetros de los episodios analizados

La **Tab.20** muestra un resumen de todos los parámetros obtenidos en el **Capítulo 7** en el que se describen los 10 episodios de recarga/descarga desarrollados en el acuífero simulado con respecto al modelo MCC.

Tab.20: Parámetros de los ajustes realizados a las recargas del acuífero simulado respecto al MCC.

Experimento 2	Origen agua	Modelo	$\phi(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1})$	$\lambda(\text{h}^{-1})$	$C_o(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1})$
Episodio 2	Grifo	MCC	6.0	0.012	416
Episodio 3	Grifo	MCC	6.3	0.013	347
Episodio 4	Grifo	MCC	7.4	0.017	253
Episodio 5	Rica en ^{222}Rn	MCC	9.6	0.024	696
Episodio 6	Rica en ^{222}Rn	MCC	10.0	0.022	677
Episodio 7	Rica en ^{222}Rn	MCC	10.8	0.025	815
Experimento 3	Origen agua	Modelo	$\phi(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1})$	$\lambda(\text{h}^{-1})$	$C_o(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1})$
Episodio 8	Grifo	MCC	7.0	0.023	219
Episodio 9	Rica en ^{222}Rn	MCC	9.0	0.030	689
Experimento 4	Origen agua	Modelo	$\phi(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1})$	$\lambda(\text{h}^{-1})$	$C_o(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1})$
Episodio 10	Grifo	MCC	5.1	0.017	230
Episodio 11	Rica en ^{222}Rn	MCC	6.0	0.023	621

De la misma forma, en la **Tab.21** se pueden ver un resumen de todos los parámetros que se obtienen cuando se aplica el modelo MCA a la parte correspondiente de los episodios estudiados.

Tab.21: Parámetros de los ajustes realizados a las recargas del acuífero simulado respecto al MCA.

Experimento 2	Origen agua	Modelo	d (Bq·l ⁻¹ ·h ⁻¹)	λ*(h ⁻¹)	C ₀ (Bq·l ⁻¹)
Episodio 2	Grifo	MCA	444.5	1.071	478
Episodio 3	Grifo	MCA	420.1	1.174	490
Episodio 4	Grifo	MCA	294.0	1.104	470
Episodio 5	Rica en ²²² Rn	MCA	882.7	1.278	431
Episodio 6	Rica en ²²² Rn	MCA	854.5	1.276	468
Episodio 7	Rica en ²²² Rn	MCA	926.2	1.153	415
Experimento 3	Origen agua	Modelo	d (Bq·l ⁻¹ ·h ⁻¹)	λ*(h ⁻¹)	C ₀ (Bq·l ⁻¹)
Episodio 8	Grifo	MCA	13.6	0.089	279
Episodio 9	Rica en ²²² Rn	MCA	135.6	0.096	278
Experimento 4	Origen agua	Modelo	d (Bq·l ⁻¹ ·h ⁻¹)	λ*(h ⁻¹)	C ₀ (Bq·l ⁻¹)
Episodio 10	Grifo	MCA	7.6	0.064	287
Episodio 11	Rica en ²²² Rn	MCA	107.1	0.073	304

8.1.2 Concentración de ²²²Rn del agua de recarga

Aplicando las **Eq.40** y **52** a los parámetros presentados en las **Tab.20** y **21**, se obtienen el resto de parámetros que faltan por conocer del sistema (λ_v), así como la concentración de ²²²Rn en el agua de aporte (C^*) implicada en las recargas. Las expresiones anteriormente mencionadas ya vistas en el **Capítulo 6** son:

$$\left\{ \begin{array}{l} \lambda = \lambda_{222Rn} + \lambda_v \\ d = \phi + \lambda_l \cdot C^* \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} \text{(Eq.40)} \\ \text{(Eq.52)} \end{array}$$

En la **Tab.22** se pueden ver los resultados obtenidos al aplicar estas expresiones con los parámetros presentados en las **Tab.20** y **21**, así como la λ_i fijada para hacer los ajustes. Estos resultados muestran las concentraciones de ^{222}Rn que presentan según el modelo las aguas utilizadas en las recargas (C^*) de los episodio analizados junto con su incertidumbre estimada tras aplicar propagación de errores (anexo I).

La última columna de la **Tab.22** representa la concentración de ^{222}Rn en el agua utilizada en las recargas de los distintos episodios multiplicada por un factor 0.7 porque según ensayos propios realizados con descargas de agua enriquecidas de ^{222}Rn , existe una desorción media entorno al 30% respecto de la actividad original que presenta el agua. Este proceso de desorción se produce durante el trasvase desde el depósito de recarga al propio acuífero, siendo más significativo cuanto menor sea el caudal.

Tab.22: Parámetros finales de cada episodio de recarga estudiado en el acuífero simulado junto con la determinación final de la concentración de ^{222}Rn en el agua de recarga.

Experimento 2	Origen agua	λ_v (h ⁻¹)	λ_i (h ⁻¹)	C^* (Bq·l ⁻¹)	C (Bq·l ⁻¹)
Episodio 2	Grifo	0.004	1.059	414 ± 2	< L.D.
Episodio 3	Grifo	0.005	1.161	356 ± 7	< L.D.
Episodio 4	Grifo	0.009	1.086	264 ± 12	< L.D.
Episodio 5	Rica en ^{222}Rn	0.016	1.254	696 ± 7	2109 ± 88
Episodio 6	Rica en ^{222}Rn	0.019	1.254	673 ± 4	1805 ± 76
Episodio 7	Rica en ^{222}Rn	0.017	1.128	812 ± 15	2191 ± 91
Experimento 3	Origen agua	λ_v (h ⁻¹)	λ_i (h ⁻¹)	C^* (Bq·l ⁻¹)	C (Bq·l ⁻¹)
Episodio 8	Grifo	0.015	0.066	100 ± 10	< L.D.
Episodio 9	Rica en ^{222}Rn	0.023	0.066	1948 ± 88	3340 ± 136
Experimento 4	Origen agua	λ_v (h ⁻¹)	λ_i (h ⁻¹)	C^* (Bq·l ⁻¹)	C (Bq·l ⁻¹)
Episodio 10	Grifo	0.009	0.047	53 ± 10	< L.D.
Episodio 11	Rica en ^{222}Rn	0.015	0.050	2022 ± 114	3313 ± 135

El L.D. (límite de detección) que presenta el Triathler en la medida de ^{222}Rn en agua es de 2.2 Bq·l⁻¹. El agua de grifo presentó valores como eran esperables inferiores al L.D. en todos los episodios estudiados.

8.1.3 Análisis de los resultados

Experimento 2: descarga y recarga rápidas

Como se puede ver en la **Tab.22**, los **episodios 2, 3 y 4** con agua del grifo que simulan la recarga de un acuífero con agua de lluvia, presentan unas concentraciones muy por encima de las esperables. Estos resultados indican que a pesar de que el modelo se ajusta muy bien por partes separadas (MCC y MCA), una vez unidas para determinar la C^* , el modelo no permite determinar con acierto la concentración del agua de aporte en las condiciones del experimento 2 con agua del grifo, aunque sí permite ver que se utiliza un agua de aporte con menor concentración que la que presenta el acuífero.

En cuanto a los **episodios 5, 6 y 7** con agua rica en ^{222}Rn , simulando la recarga del acuífero con aguas subterráneas, la C^* estimada para el agua de recarga presenta un valor muy superior al que presenta el agua del acuífero mostrando de esta forma que la recarga se realizó con aguas profundas ricas en ^{222}Rn . Sin embargo, los valores obtenidos para C^* (696 ± 7 ; 673 ± 4 ; $812 \pm 15 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) en los tres casos analizados se encuentran muy por debajo de los valores reales estimados (2109 ± 88 ; 1805 ± 76 ; $2191 \pm 91 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) empleados en las recargas a pesar de que el modelo se ajusta muy bien por separado (MCC y MCA) en este experimento de recargas con agua rica en ^{222}Rn .

Experimento 3: descarga rápida y recarga progresiva

Tal como puede verse en la **Tab.22**, la C^* ($100 \pm 10 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) obtenida según el modelo para una recarga progresiva del acuífero con agua del grifo que simula agua de lluvia tras una descarga rápida (**episodio 8**), presenta un valor bastante mejor a los obtenidos en el **experimento 2** aunque sigue estando lejos del valor real (<L.D.). A pesar de esta diferencia, los ajustes que presenta el modelo en sus vertientes (MCC y MCA) con respecto a los valores experimentales son muy buenos por separado, y muestran que el acuífero se recarga con un agua más pobre en ^{222}Rn que la que presenta el propio acuífero ($\approx 280 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$).

El valor obtenido ($1948 \pm 88 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) en la simulación de recarga con agua profunda rica en ^{222}Rn (**episodio 9**) presenta un valor bastante superior a la concentración del acuífero indicando claramente que la recarga se ha producido con aguas subterráneas. Sin embargo, el valor de C^* sigue lejos del valor real estimado empleado en la recarga ($3340 \pm 136 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) a pesar de los excelentes ajustes a MCC y MCA.

Experimento 4: descarga y recarga progresivas

El valor de C^* que se obtiene en esta ocasión ($53 \pm 10 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) cuando se simula la recarga del acuífero con agua de lluvia (**episodio 10**) resulta ser bastante mejor que en los casos anteriores y bastante próximo al valor real que presenta el agua del grifo (<L.D.). Los valores de R-square obtenidos en los ajustes de los valores experimentales a MCC y MCA son bastante buenos, próximos a la unidad.

El resultado ($2022 \pm 114 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) obtenido cuando la simulación es de recarga con agua subterránea rica en ^{222}Rn (**episodio 11**) sigue estando lejos del valor real estimado empleado en la recarga ($3313 \pm 135 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) aunque mejora notablemente el resultado del episodio anterior analizado, indicando claramente que la recarga se ha realizado con agua de elevada concentración en ^{222}Rn .

Se debe tener en cuenta, que la concentración de ^{222}Rn del agua empleada en la recarga y que se refleja en la **Tab.22** ($3313 \pm 135 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) no deja de ser un valor estimado, puesto que la recarga progresiva del agua ($3.6 \text{ l}\cdot\text{h}^{-1}$) en este **episodio 11** implica un caudal tan pequeño que está sometido a un importante fenómeno de desorción durante el proceso de recarga que tuvo una estimación media del 30%.

De acuerdo a lo expuesto en el anterior párrafo, el resultado obtenido por el modelo en este **episodio 11** con agua rica en ^{222}Rn presenta unos resultados que pueden considerarse relativamente satisfactorios ante la incertidumbre de poder conocer con exactitud la concentración real del agua que llega al acuífero simulado.

8.2 Balneario de Las Caldas de Besaya

Se procede a analizar los resultados de igual forma que la descrita anteriormente para el estudio del acuífero simulado, es decir, se presentan las tablas resumen con los parámetros experimentales de los 5 episodios analizados para, a continuación aplicando las **Eq 40, 52 y 53**, determinar los parámetros que permiten estimar la concentración de ^{222}Rn del agua de recarga del Balneario (C^*).

$$\left\{ \begin{array}{l} \lambda = \lambda_{222\text{Rn}} + \lambda_v \quad (\text{Eq.40}) \\ d = \phi + \lambda_I \cdot C^* \quad (\text{Eq.52}) \\ \lambda^* = \lambda + \lambda_I \quad (\text{Eq.53}) \end{array} \right.$$

8.2.1 Parámetros de los episodios analizados

En la **Tab.23** se pueden ver los parámetros obtenidos en el ajuste con respecto al modelo MCC aplicado a los episodios de recarga estudiados en el Balneario:

Tab.23: Parámetros del ajuste realizado a las recargas del Balneario respecto al MCC.

Episodio	Modelo	$\phi(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1})$	$\lambda(\text{h}^{-1})$	$C_o(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1})$
1 ^{ra} Recarga	MCC	312.5	0.440	316
2 ^{da} Recarga	MCC	165.1	0.239	601
3 ^{ra} Recarga	MCC	270.7	0.397	557
4 ^{ta} Recarga	MCC	279.4	0.402	585
5 ^{ta} Recarga	MCC	225.4	0.330	534

De igual forma, en la **Tab.24** se encuentran los parámetros obtenidos en los ajustes con respecto al modelo MCA de las recargas analizadas en el Balneario de Las Caldas de Besaya.

Tab.24: Parámetros del ajuste realizado a las recargas del Balneario respecto al MCA.

Episodio	Modelo	$d(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{h}^{-1})$	$\lambda^*(\text{h}^{-1})$	$C_0(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1})$
1 ^{ra} Recarga	MCA	453.5	0.764	691
2 ^{da} Recarga	MCA	309.6	0.521	660
3 ^{ra} Recarga	MCA	417.4	0.721	657
4 ^{ta} Recarga	MCA	466.6	0.808	650
5 ^{ta} Recarga	MCA	290.1	0.569	619

Una vez se disponen de todos los parámetros obtenidos con los ajustes realizados a los valores experimentales respecto a MCC y MCA es el momento de determinar la concentración del agua de recarga, C^* .

8.2.2 Concentración de ^{222}Rn del agua de recarga

Aplicando las **Eq.40, 52 y 53** a los parámetros experimentales obtenidos (**Tab.23 y 24**) se determinan el resto de parámetros necesarios para caracterizar completamente los episodios analizados en el Balneario. Los resultados de aplicar estas expresiones se pueden ver en la **Tab.25**, donde se observan las concentraciones proporcionadas por el modelo para el ^{222}Rn en el agua de recarga empleada en el Balneario (C^*).

Tab.25: Parámetros finales de cada episodio de recarga estudiado en el Balneario de Las Caldas de Besaya, con la determinación final de la concentración de ^{222}Rn en el agua de recarga.

Episodio	$\lambda_v(\text{h}^{-1})$	$\lambda_l(\text{h}^{-1})$	$C^*(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1})$	$C(\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1})$
1 ^{ra} Recarga	0.432	0.324	436 ± 80	560 ± 80
2 ^{da} Recarga	0.231	0.282	512 ± 105	
3 ^{ra} Recarga	0.389	0.324	453 ± 151	
4 ^{ta} Recarga	0.394	0.406	461 ± 118	
5 ^{ta} Recarga	0.322	0.239	271 ± 108	

8.2.3 Análisis de los resultados

Tal como puede apreciarse en la **Tab.25**, las concentraciones de ^{222}Rn obtenidas según el modelo para el agua de recarga (C^*) empleada en los 5 episodios analizados en el Balneario de Las Caldas de Besaya durante el año 2012 resultan ser muy próximas a los $500 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. Este valor se encuentra bastante cercano al valor real del agua bombeado desde el Pozo Exterior que ronda los $560 \pm 80 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ según medidas reciente realizadas y estudios anteriores (**Tab.19**).

Por tanto, los resultados obtenidos en el estudio real del Balneario de Las Caldas de Besaya aplicando el Modelo de Compartimento Cerrado y el Modelo de Compartimento Abierto resultan plenamente satisfactorios al presentar el modelo valores muy cercanos a los reales.

CAPÍTULO

9 Conclusiones

Las principales conclusiones extraídas del estudio realizado en esta tesis doctoral se enumeran a continuación:

1. Se han preparado muestras acuosas con ^{222}Rn a partir de una fuente certificada de ^{226}Ra del NIST (National Institute of Standards and Technology) para su utilización en la calibración de los equipos de medida de ^{222}Rn en agua empleados en esta tesis, que servirán además como patrones de referencia para el mantenimiento de la acreditación ENAC 17025 de LaRUC.
2. Se han organizado dos ejercicios de intercomparación de ^{222}Rn en agua entre la mayoría de laboratorios nacionales dedicados a la medida de radón en agua. Los resultados de las mismas han sido utilizados para el aseguramiento de la calidad de todos los participantes.
3. Se ha calibrado y participado en ejercicios de intercomparación nacionales e internacionales de ^{222}Rn en agua con el equipo de espectrometría α de centelleo líquido (LSC), Triathler 425-034, para su uso como equipo de referencia para la medida de ^{222}Rn en agua.
4. Se ha calibrado el espectrómetro gamma HPGe(Li) tanto en energías como en eficiencia para la medida de ^{222}Rn en agua, participando en Intercomparaciones nacionales además de establecer un factor de conversión respecto al Triathler 425-034.
5. Se ha calibrado el sistema medida de ^{222}Rn en agua del RTM 2100 respecto al equipo de centelleo líquido (Triathler 425-034) y respecto al equipo de espectrometría gamma HPGe(Li) para convertir sus medidas de radón en aire ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) a radón en agua ($\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$) a través de un factor de conversión.
6. Se ha realizado el control de calidad de las medidas de los equipos Radon scout y RAD7 radon detector a través de la comparativa realizada en la cámara de acero de 1 m^3 de LaRUC tomando como referencia el ATMOS 12 DPX, equipo calibrado y certificado por PTB (The National Metrology Institute of Germany).
7. Se ha construido un acuífero a escala de laboratorio para simular recargas y descargas, alimentado por una fuente de ^{226}Ra que proporciona una concentración estable de ^{222}Rn una vez alcanzado el equilibrio radiactivo.

8. Se ha diseñado y llevado a cabo una serie de episodios de recarga-descarga en el acuífero simulando procesos naturales como filtraciones por agua de lluvia o descargas de aguas más subterráneas modificando caudales y volúmenes tanto en las recargas como en las descargas.
9. Los ajustes realizados a los valores experimentales tanto en el acuífero simulado como en el Balneario de Las Caldas de Besaya respecto al Modelo de Compartimento Cerrado (MCC) y al Modelo de Compartimento Abierto (MCA) presentan buenos valores de R-square, próximos a la unidad.
10. El estudio de la dinámica de ambos acuíferos (Simulado y Balneario) permite determinar con claridad las variaciones de concentración de ^{222}Rn en el acuífero, determinando si el agua de aporte (C^*) es de menor o mayor concentración que la propia del acuífero.
11. Los resultados obtenidos por el modelo para la concentración del agua de aporte en los diferentes episodios de recarga/descarga desarrollados en el acuífero simulado, presentan unos valores distintos a los esperables cuando el volumen del acuífero no permanece constante, es decir, cuando las recargas y descargas no son simultáneas y tienen caudales distintos.
12. El modelo explica satisfactoriamente las concentraciones del agua de aporte (C^*) en el caso real del Balneario de Las Caldas de Besaya sin diferir significativamente de los reales. De igual forma, los resultados obtenidos por el modelo en el acuífero simulado cuando la recarga/descarga se realizan de forma simultánea y progresiva (situación más parecida al caso real del Balneario de Las Caldas) se ajustan razonablemente a los valores esperados.

Anexo

Anexo I: Propagación de errores para el cálculo de la concentración del agua de recarga.

Para calcular la incertidumbre asociada a una variable “y” que se obtiene indirectamente a partir de otras variables cuyo error es conocido, se aplica propagación de errores con la ecuación general:

$$\delta y = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial y}{\partial x_i}\right)^2 \cdot \delta x_i^2} \quad (\text{Eq.55})$$

En nuestro caso, la variable cuya incertidumbre se quiere conocer es C^* (Eq.56), y esta expresión se obtiene a partir de las Eq.52 y 53:

$$C^* = \frac{d-\phi}{\lambda^*-\lambda} \quad (\text{Eq.56})$$

Aplicando la ecuación general de propagación a esta ecuación resulta que:

$$\delta(C^*) = \sqrt{\left(\frac{\partial C^*}{\partial a} \cdot \delta(d)\right)^2 + \left(\frac{\partial C^*}{\partial \phi} \cdot \delta(\phi)\right)^2 + \left(\frac{\partial C^*}{\partial \lambda^*} \cdot \delta(\lambda^*)\right)^2 + \left(\frac{\partial C^*}{\partial \lambda} \cdot \delta(\lambda)\right)^2} \quad (\text{Eq.57})$$

Donde:

$$\frac{\partial C^*}{\partial d} = \frac{1 \cdot (\lambda^* - \lambda) - 0}{(\lambda^* - \lambda)^2} = \frac{\lambda^* - \lambda}{(\lambda^* - \lambda)^2} = \boxed{\frac{1}{\lambda^* - \lambda}} \quad (\text{Eq.58})$$

$$\frac{\partial C^*}{\partial \phi} = \frac{(-1) \cdot (\lambda^* - \lambda) - 0}{(\lambda^* - \lambda)^2} = \frac{-(\lambda^* - \lambda)}{(\lambda^* - \lambda)^2} = \boxed{\frac{-1}{\lambda^* - \lambda}} \quad (\text{Eq.59})$$

$$\frac{\partial C^*}{\partial \lambda^*} = \frac{(0) - 1 \cdot (d - \phi)}{(\lambda^* - \lambda)^2} = \frac{-(d - \phi)}{(\lambda^* - \lambda)^2} = \boxed{\frac{\phi - d}{(\lambda^* - \lambda)^2}} \quad (\text{Eq.60})$$

$$\frac{\partial C^*}{\partial \lambda} = \frac{(0) - (-1) \cdot (d - \phi)}{(\lambda^* - \lambda)^2} = \frac{(d - \phi)}{(\lambda^* - \lambda)^2} = \boxed{\frac{d - \phi}{(\lambda^* - \lambda)^2}} \quad (\text{Eq.61})$$

Tras la aplicación de propagación de errores a la **Eq.56** tendremos la C^* con su respectiva incertidumbre, tal como se indica a continuación:

$$C^* = A \pm B \text{ (Bq} \cdot \text{l}^{-1}\text{)}$$

(Eq.62)

Bibliografía

[ATM12] ATMOS 12 DPX. Manual de usuario. Gammadata Instrument AB, Sweden. <http://www.gammadata.se/assets/Uploads/ATMOS-12-DPX-EN-ver1.51.pdf>. 26/03/2017.

[BEL95] P. Belloni, M. Cavaoli, G. Ingrao, C. Mancini. 1995. Optimization and comparison of three different methods for the determination of Rn-222 in water. *The science of the Total Environment* .173/174, 61-67.

[BEV03] Philip R. Bevington, D. Keith Robinson, 2003. *Data Reduction and error analysis for the physical sciences*. Third edition. New York, McGraw-Hill Higher Education. 2003. ISBN 0-07-247227-8.

[BOE03] REAL DECRETO 140/2003 de 7 de Febrero por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano. BOE núm 45. pp 7228-7245 (2003).

[BOE16] 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.. BOE núm 183. pp 53106-53126 (2016).

[BUG96] Bugna, G. C., J. P. Chanton, J. E. Young, W. C. Burnett, P. H. Cable. 1996. The importance of groundwater discharge to the methane budgets of nearshore and continental shelf waters of the northeastern Gulf of Mexico. *Geochimica and Cosmochimica Acta*. 60(23): 4735–4746.

[BUR01] Burnett, W. C., G. Kim, and D. Lane-Smith. 2001. A continuous monitor for assessment of Rn-222 in the coastal ocean. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 249, 167–172.

[BUR10] Burnett, W., Peterson, R., Santos, I. y Hicks, R. 2010. Use of automated radon measurements for rapid assessment of groundwater flow into Florida streams. *J Hydrol*, 380: 298–304.

[CAB96a] Cable, J. E.; G. C. Bugna; W. C. Burnett; J. P. Chanton. 1996. Application of Rn-222 and CH₄ for assessment of groundwater discharge to the coastal ocean. *Limnology and Oceanography*. 41, 1347–1353.

[CAB96b] Cable J.E., Burnett W.C., Chanton J.P., and Weatherly G.L. (1996b) Estimating Groundwater Discharge into the Northeastern Gulf of Mexico Using Radon-222. *Earth and Planetary Science Letters* . 194, 591-604.

- [CEL15]** Santiago Celaya Gonzalez. 2015. Proyecto fin de Máster Universitario en Investigación en Ingeniería Ambiental. "Optimización de un equipo portátil de centelleo líquido para medida de ^{222}Rn en agua. Universidad de Cantabria-UPV.
- [CHA08]** Charette, M.A; Buessler, K.O; Burnett,W.C. 2008. Chapter 5, Uranium and Thorium Series Nuclides as Tracers of Submarine Groundwater Discharge. *Radioactivity in the Environment*. 13,155-191.
- [CHR08]** Christian Ferrarin, John Rapaglia, Luca Zaggia, Georg Umgiesser, Giovanni Maria Zuppi. 2008. Coincident application of a mass balance of radium and a hydrodynamic model for the seasonal quantification of groundwater flux into the Venice Lagoon, Italy. *Marine Chemistry*. 112,179-188.
- [CHU99]** S.Y.F. Chu, L.P. Ekström and R.B. Firestone. (1999, February). *Table of Radioactive Isotopes*. August 10,2015, from <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/.c>
- [CIU17]**http://www.ciudadciencia.es/doc/files/FICHA_CLASIFICACION%20DE%20ROCAS_CC.pdf Fecha de consulta. 30/03/2017. CSIC-UCM.
- [COO03]** P.G. Cook, G. Favreau, J.C. Dighton, S. Tickell. 2003. Determining natural groundwater influx to a tropical river using radon, chlorofluorocarbons and ionic environmental tracers. *Journal of Hydrology*. 277, 74–88
- [COO06]** P. G. Cook, S. Lamontagne, D. Berhane, J. F. Clark. 2006. Quantifying groundwater discharge to Cockburn River, southeastern Australia, using dissolved gas tracers ^{222}Rn and SF_6 . *Water Resources Research*. vol. 42, w10411.
- [COP63]** Coppins, Rene, 1963. *La radiactividad de las rocas. Título original "La radioactivite des roches"* Ed. Eudeba. Buenos Aires.Col. Cuadernos de Eudeba nº 94, rústica.
- [COR99]** Corbett, D. R., J. Chanton, W. Burnett, K. Dillon, C. Rutkowski, and J. W. Fourqurean. (1999).Patterns of groundwater discharge into Florida Bay. *Limnology and Oceanography*, 44, 1045–1055.
- [COT90]** C. Richard Cothorn, Paul A. Rebers, 1990. *Radon, Radium and Uranium in Drinking Water*. ISBN 0-87371-207-2. Lewis Publishers, INC.
- [CSN01]** Proyecto MARNA. Mapa 1:1000000 de radiación gamma natural. Ediciones del Consejo de Seguridad Nuclear. 2001. www.csn.es.
- [CUR68]** Lloyd A. Currie. 1968. Limits for Qualitative Detection and Quantitative determination: Application to radiochemistry. *Analytical Chemistry*. 40, 586-593.
- [DIR13]** DIRECTIVA 2013/51/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. Diario oficial de la Unión Europea L 296/12 (2013).

[DIR98] DIRECTIVA 98/83/CE DEL CONSEJO de 3 de Noviembre de 1998 relativa a la calidad de las aguas destinadas al consumo humano. Diario oficial de la Unión Europea L 330/32 (1998).

[ESI95] Eisenlohr, L., Surbeck, H., 1995. Radon as a natural tracer to study transport processes in a karst system. An example in the Swiss Jura. Comptes Rendus de l'Academie des Sciences. 321,761-767.

[EUR14] European Commission, Public Health. 2014. 4th edition, EUROPEAN CODE AGAINST CANCER: 12 ways to reduce your cancer risk". Fecha consulta: 26/05/2017 https://ec.europa.eu/health/sites/health/files/major_chronic_diseases/docs/2014_ec_ac_en.pdf

[FOR16] FOREGS-EuroGeoSurveys. Geochemical Atlas of Europe. http://weppi.gtk.fi/publ/foregsatlas/maps_table.php . Fecha de consulta 31/03/2017.

[FUE15] Ismael Fuente Merino. 2015. Tesis doctoral: Puesta a punto de un equipo de fluorescencia de rayos x portátil con fuentes radiactivas: Aplicaciones medioambientales. Universidad de Cantabria.

[GAL04] M.Galán López, A. Martín Sánchez, V. Gómez Escobar. Application of ultra-low level liquid scintillation to the determination of ²²²Rn in groundwater. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 261, No 3 (2004) 631-636.

[GAR13] García Talavera, M., Matarranz, J.L., Gil, R., García, J.P., Suárez, E., 2013a. Predictive Map of Exposure to Radon in Spain. CSN. Ref: INT-04.31.

[GEN90] David P. Genereux, Harold F. Hemond. 1990. Naturally Occurring Radon ²²² as a Tracer for Streamflow Generation: Steady State Methodology and Field Example. Water Resources Research, vol. 26, nº12, 3065-3075.

[GEN93] David P, Genereux, Harold F. Hemond ,Patrick J. Mulholland. 1993. Use of radon-²²² and calcium as tracers in a three-end-member mixing model for streamflow generation on the West Fork of Walker Branch Watershed. Journal of Hydrology. 142, 167-211.

[GER00] HpGe .Low Level Gamma Spectroscopy. Manual de Usuario del equipo Canberra GL-2015-7500.

[GOM95] Jose Gómez Arozamena. Tesis Doctoral. Medida de niveles de radiactividad en aguas. Estimación de las dosis de radiación producidas. Universidad de Cantabria. 1995.

- [GUI02]** K.J. McGuire, D.R. DeWalle, W.J. Gburek. 2002. Evaluation of mean residence time in subsurface waters using oxygen-18 fluctuations during drought conditions in the mid-Appalachians. *Journal of Hydrology*. 261, 132-149.
- [GUN86]** Hans R. Von Gunten, Thomas P. Kull. 1986. Infiltration of inorganic compounds from the Glatt River, Switzerland, into a groundwater aquifer. *Water, Air, and Soil Pollution*. 29, 333-346.
- [HAM98]** Hiromasa Hamada, Takami Komae. 1998. Analysis of recharge by paddy field irrigation using ^{222}Rn concentration in groundwater as an indicator. *Journal of Hydrology*. 205, 92-100.
- [HAN69]** Karl Hans Wedepohl, Carl Wilhelm Correns, Denis Martin Shaw, Karl K Turekian. *Handbook of Geochemistry*. Springer-Verlag-Heidelberg-New York, 1969. ISBN 978-3-642-46302-0.
- [HOE89]** E. Hoehn, H. R. Von Gunten. 1989. Radon in Groundwater: A tool to assess infiltration from surface waters to aquifers. *Water Resources Researc*. Vol 25, nº8, 1795-1803.
- [IAE11]** International Agency Energy Atomic. IAEA “Radiation Protection and Safety of Radiation Sources. International Basic Safety Standards” (2011).
- [IAE88]** I.A.E.A. Technical Reports Series nº284. *Geochemical Exploration for Uranium*, Vienna, 1998.
- [ICR14]** ICRP, 2014. Radiological protection against radon exposure, ICRP publication 126. *Ann. ICRP* 43(3).
- [ICR15]** International Commission on Radiological Protection. 2015. *ICRP Main Commission Meeting, April 13-17, 2015- Sydney, Australia*. ICRP ref: 4821- 2831- 8499.
- [JHO08]** Johnson, A.G.; Glenn, C. R.; Burnett, W. C.; Peterson, R.N.; Lucey, P. G. .Aerial infrared imaging reveals large nutrient-rich groundwater inputs to the ocean. *Geophysical Research Letters*. Vol 35-L 15606.
- [JHO12]** John Rapaglia, Sotirios Koukoulas, Luca Zaggia, Michal Lichter, Giorgia Manfé , Athanasios T. Vafeidis. 2012. Quantification of submarine groundwater discharge and optimal radium sampling distribution in the Lesina Lagoon, Italy. *Journal of Marine Systems*. 91, 11–19.
- [KAT98]** Brian G. Katz, John S. Catches, Thomas D. Bullen, Robert L. Michel. 1998. Changes in the isotopic and chemical composition of ground water resulting from a recharge pulse from a sinking stream. *Journal of Hydrology*. 211, 178–207.
- [KEL90]** Ellins, K. E., Roman-Mas, A. ; Lee, R. 1990. Using ^{222}Rn to examine groundwater/surface discharge interaction in the Rio Grande de Manatí, Puerto rico. *Journal of Hydrology*. 115, 319-341.

- [KIT10]** Michael E. Kitto, T.A. Menia, A. Bari, E.M. Fielman, D.K. Haines. 2010. *Development and intercomparison of a reusable radon-in-water standard*. Radiation Measurements. 45, 231-233.
- [KIT94]** Michael E. Kitto. 1994. Characteristics of liquid scintillation analysis of radon in water. Journal of Radioanalytical and nuclear chemistry. Vol.185, No 1, 91-99.
- [KIT96]** M. E. Kitto, M. K. Kuhland y R. E. Dansereau. (1996). Direct comparison of three methods for the determination of radon in well water. *Health Physics Society*. 70(3), 358-362.
- [KOW10]** Kowalczk, A.J., Froelich, P.N., 2010. Cave air ventilation and CO₂ outgassing by radon-222 modeling: how fast do caves breathe?. *Earth and Planetary Science Letters*. 289, 209–219.
- [LAR06]** J. Lario, S. Sánchez-Moral, S. Cuezva, M. Taborda, V. Soler. 2006. *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. 40, 7395-7400.
- [LAS15]** Marta Fuente Lastra, Carlos Sainz Fernández, Luis Santiago Quindós Poncela. 2015. Trabajo fin de Grado en Física de la Universidad de Cantabria: Puesta a punto de un sistema de medida de radón en agua aplicado al estudio de acuíferos.
- [LUC13]** Lucia Ortega, Jorge Hornero, Marisol Manzano. 2013. Aplicación del ²²²Rn para identificar y cuantificar descargas de agua subterránea en el río Mundo (Albacete, España). *Temas actuales de la hidrología subterránea* .197-204.
- [LUD11]** Ludovic Savoy, Heinz Surbeck, Daniel Hunkeler. 2011. Radon and CO₂ as natural tracers to investigate the recharge dynamics of karst aquifers. *Journal of Hydrology*. 406, 148–157.
- [MAT 88]** Mathieu, G. G., P. E. Biscaye, R. A. Lupton, and D. E. Hammond. 1988. System for measurement of ²²²Rn at low levels in natural waters. *Health Physics*, 55, 989–992.
- [MEN13]** Menor Salván, C, 2013. *La radiactividad natural y los minerales radiactivos*. Escuela de Minas. UPM.
- [MUL07]** N.J. Mullinger, A.M. Binley, J.M. Pates, N.P. Crook. 2007. Radon in Chalk streams: Spatial and temporal variation of groundwater sources in the Pang and Lambourn catchments, UK. *Journal of Hydrology*. 339, 172– 182.
- [NAZ88]** Nazaroff W, Nero A. W. *Radon and its decay products in indoor air*. 1988. New York NY, Wiley and Sons.
- [NUC17]** Alejandro Sonzogni, NNDC, Brookhaven National Laboratory. National Nuclear Data Center. https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/indx_sigma.jsp. Fecha de consulta: 03/03/2017.

- [PRZ07]** Tadeusz A. Przylibski. 2007. Radon as a natural radioactive tracer for studying crystalline rock aquifers- a few usage concepts. Acta Universitatis Wrastislaviensis : 3041. Hidrogeologia 125-142.
- [QUI95]** Quindós L. Radón un gas radiactivo de origen natural en su casa. Universidad de Cantabria-Consejo de Seguridad Nuclear. 1997. www.elradon.com
- [RAB13]** Daniel Rábago Gómez, Carlos Sainz Fernández. 2013. Trabajo fin de Carrera Licenciatura de Física de la Universidad de Cantabria: Aplicación de un sistema de monitorización de la concentración de gas radón en el agua de una instalación termal.
- [RAD07]** RAD7 RADON DETECTOR. Manual de usuario. DurrIDGE Company Inc. Bedford, England. www.durridge.com.
- [ROB90]** Robador A., Heredia N., Rodríguez L. R., Marquinez J. 1990. "Mapa geológico de Cantabria". Instituto Geológico y Minero de España.
- [ROG58]** Rogers, A.S., 1958. Physical behavior and geologic control of radon in mountain streams. U.S. Geol. Surv. Bull., 1052-E, 187pp.
- [RPD88]** Radiation Protection Dosimetry. Radiological Characteristics of a village on Uraniferous Granitics Ground in Finland. Vol.24. Nuclear Technology Publishing. 1988.
- [RTM03]** Sarad Gmbh Environmental Instruments "RTM 2100 Radon/Thoron monitor. Operation manual". 2003.
- [RUB15]** Jesús G. Rubiano, Héctor Alonso, Tatiana Cruz-Fuentes, Jonay González-Guerra, María del Carmen Cabrera, Miguel A. Arnedo, Alicia Tejera, Alejandro Rodríguez-Gonzalez, Francisco J. Pérez-Torrado and Pablo Martel. 2015. Radon in Groundwater of the Northeastern Gran Canaria Aquifer. Water. 7, 2575-2590.
- [SAI16]** Carlos Sainz, Daniel Rábago, Ismael Fuente Merino, Santiago Celaya, Luis Santiago Quindós. 2016. Description of the behavior of an aquifer by using continuous radon monitoring in a thermal spa. Science of the Total Environment. 543, 460-466.
- [SAK11]** Sakoda, A., Ishimori, Y. y Yamaoka, K. (2011). *A comprehensive review of radon emanation measurement for mineral, rock, soil, mill tailing and fly ash*. Applied Radiation and Isotopes, 69: 1422-1435.
- [SAL10]** Laina Salonen. 2010. Calibration of the direct LSC method for radon in drinking water: Interference from 210Pb and its progenies accumulated in 226Ra standard solution. Applied Radiation and Isotopes. 68, 131-138.
- [SAR07]** SARAD GmbH, "measurement of the radon concentration of water samples", Dresden, Germany (2007).
- [SAV11]** Ludovic Savoy, Heinz Surbeck, Daniel Hunkeler. 2011. Radon and CO2 as natural tracers to investigate the recharge dynamics of karst aquifers. Journal of Hydrology. 406, 148-157.

- [SCH06]** M.Schubert, W. Buerkin, P.Peña, A.E.López, M.Balcázar. On-site determination of the radon concentration in water samples: Methodical background and results from laboratory studies and a field-scale test. *Radiat. Meas.* 2006, 41, 492–497.
- [SCH14]** Michael Schubert, Jan Scholten, Axel Schmidt, Jean François Comanducci, Mai Khanh Pham, Ulf Mallast and Kay Knoeller. 2014. Submarine Groundwater Discharge at a Single Spot Location: Evaluation of Different Detection Approaches. *WATER*. 6,584-601.
- [SCO05]** Sarad Gmbh Environmental Instruments “User Manual Radon Scout”. 2005.
- [SLO04]** Caroline P. Slomp , Philippe Van Cappellen. 2004. Nutrients inputs to the coastal ocean through submarine groundwater discharge: controls and potential impact. *Journal Hydrology*. 295, 64-86.
- [SOT89]** J.Soto , A. Bonet, N. Díaz – Caneja, T. Delgado, P.L. Fernández, J. Gómez, I.Gutiérrez, L.S. Quindós, C. Ródenas. 1989. Medida de los niveles de Rn222 y Ra226 en balnearios y aguas mineromedicinales de Cantabria. *Actas VII Congreso Nacional de Física Médica*, pp. 250-256.
- [SOT91a]** J. Soto, M.T. Delgado, P.L. Fernández, J. Gómez y L.S. Quindós. 1991. Niveles de 222Rn en el Balneario Las Caldas de Besaya. *Revista de Sanidad e Higiene Pública*. 65(1) pp 71-75.
- [SOT91b]** J. Soto, P.L. Fernández, L.S. Quindós y M.T. Delgado.1991. Radiactividad en agua de balnearios de Cantabria. *Revista MAPFRE Medicina*, vol. 2, nº 4, pp. 274-276.
- [SOT95]** Soto J., Fernandez P., Quindós L. S., Gómez J., 1995. “Radioactivity in Spanish spas”. *The Science of the Total Environment* 162, p 187-192.
- [SUA97]** Suarez. E , Fernandez, J.A., 1997. Project MARNA: Natural Gamma Radiation Map. *RSNE*, 58–65 (1997).
- [TAN78]** Tanner, A. B. (1978). Radon migration in the ground: A supplementary review. *U.S. Geol. Surv.*1052: 1-62.
- [TRI04]** Triathler. 425-034 Liquid Scintillation Counter. Owner’s Handbook. www.hidex.com.
- [UNS06]** UNSCEAR, 2006. *Effects of ionizing radiation, UNSCEAR 2006 Report volume II: Annex E, Sources to effects assessment for radon in homes and workplaces. Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation*. ISBN 978-92-1-142263-4.
- [VES04]** Dorothy J. Vesper, William B. White. 2004. Storm pulse chemographs of saturation index and carbon dioxide pressure: implications for shifting recharge sources during storm events in the karst aquifer at Fort Campbell, Kentucky/Tennessee, USA. *Hydrogeology Journal*. 12, 135–143.

[VIT91] E.Vitz. *Toward a standard method for determining waterborne radon*. Health Phys., 60(1991)817.

[WHO09] World Health Organization. Handbook on Indoor Radon (2009).

[WIS06] S. Wisser, E. Frenzel, M. Dittmer. 2006. Innovative procedure for the determination of gross-alpha/gross-beta activities in drinking water. Applied Radiation and Isotopes. 64, 368-372.