

TRABAJO FIN DE CARRERA

**Aplicación de un sistema de monitorización  
de la concentración de gas radón en el agua  
de una instalación termal.**

Autor

Daniel Rábago Gómez

Director

Carlos Sainz Fernández



Universidad de Cantabria

Licenciatura en Física

Santander, 2013

# INDICE

Resumen .....	2
1. Introducción .....	3
1.1 Comportamiento físico y químico .....	4
1.2 Radón y descendientes .....	7
1.3 Irradiación por exposición a radón .....	12
1.4 Exposición profesional (Instrucción IS-33) .....	15
1.5 Objetivos .....	17
2. Material y métodos .....	18
2.1 Área de estudio: Balneario Las Caldas de Besaya.....	18
2.2 Dispositivo experimental .....	20
2.2.1 Medida de radón en agua.....	20
- RTM 2100 .....	20
- Espectrometría gamma .....	26
2.2.2 Medida de radón en aire .....	28
- Radon Scout .....	28
2.2.3 Factor de transferencia.....	29
2.3 Modelización del comportamiento del radón en el balneario.....	30
2.3.1 Modelo de compartimento cerrado (MCC) .....	31
2.3.2 Modelo de compartimento abierto (MCA).....	33
2.4 Estudio de correlaciones .....	33
2.5 Estimación de dosis .....	35
3. Resultados.....	37
3.1 Modelos MCC y MCA .....	38
3.2 Anomalías en la concentración de radón .....	41
- Agua .....	43
- Aire.....	44
3.3 Correlaciones con parámetros físico-químicos.....	45
3.4 Estimación de dosis .....	47
4. Conclusiones.....	48
4.1 Modelos teóricos.....	48
4.2 Radón frente a parámetros físico-químicos .....	49
4.3 Legislación y dosis.....	50
5. Agradecimientos .....	51
6. Bibliografía.....	51
7. Apéndice .....	54

## Resumen

Se han analizado los niveles de radón ( $^{222}\text{Rn}$ ) en el agua y en el aire del balneario Las Caldas de Besaya de forma continua a lo largo de un año aproximadamente. El radón es un gas noble de origen natural procedente de la desintegración del radio ( $^{226}\text{Ra}$ ) ambos constituyentes de la serie radiactiva del uranio 238. Dicho gas ha sido reconocido como agente carcinógeno de pulmón por la Organización Mundial de la Salud (WHO) y la Agencia Internacional de Investigación del Cáncer (IARC). Además el R.D. 1439/2010 de 5 de Noviembre de 2010 establece la obligatoriedad de someter a estudio actividades laborales en las que los trabajadores y, en su caso, los miembros del público estén expuestos a la inhalación de radón en lugares de trabajo tales como establecimientos termales. Conjuntamente a las medidas de radón se han obtenido una serie de parámetros físico-químicos tales como el pH, el potencial redox, la conductividad eléctrica y las temperaturas del agua y del aire. Los dispositivos utilizados para realizar el estudio de la evolución temporal de la concentración de radón del balneario han sido el RTM 2100, el Radon Scout y complementariamente se ha usado la técnica de la espectrometría gamma para determinar el factor de transferencia de los tubos de silicona empleados en el dispositivo experimental. Los valores de la concentración de radón obtenidos en el agua y en el aire del interior del balneario son elevados, con una media anual de 559 Bq/l y 2850 Bq/m<sup>3</sup> respectivamente, donde el agua es la principal fuente de radón en el aire. A partir de los valores encontrados se ha calculado la dosis de radiación para pacientes y trabajadores del balneario resultante de la exposición a estos niveles de radón. En el caso de los pacientes la dosis recibida por una semana de tratamiento se hace insignificante, mientras que los trabajadores reciben una dosis anual importante, con niveles de casi 8 veces superior a la media mundial asociada a la radiación ionizante de origen natural. Los datos muestran que los procesos termales pueden controlar el comportamiento del radón y que su movilidad puede estar influenciada por varios parámetros físico-químicos tales como el pH y el potencial redox, encontrándose correlaciones significativas con ambos parámetros.

# 1. Introducción

El radón ( $^{222}\text{Rn}$ ) es un gas radiactivo de origen natural que tiene un periodo de semidesintegración  $T_{1/2}$  de 3,8 días. Es decir, el tiempo necesario para que el número de átomos se reduzca a la mitad. Se forma como el producto de la desintegración del radio ( $^{226}\text{Ra}$ ), con  $T_{1/2} = 1600$  años, el cual es miembro de la serie radiactiva del uranio ( $^{238}\text{U}$ ). El uranio y el radio se encuentran naturalmente en suelos y rocas, proporcionando una fuente continua de radón. Debido al carácter gaseoso del radón, es susceptible de escapar de la roca dependiendo de la densidad y porosidad de la misma, siendo uno de los elementos radiactivos más comunes en el agua subterránea<sup>[1]</sup>.

Además del  $^{222}\text{Rn}$  existen otros dos isótopos de origen natural, el torón ( $^{220}\text{Rn}$ ) y el actinión ( $^{219}\text{Rn}$ ), provenientes de las series radiactivas del  $^{232}\text{Th}$  y del  $^{235}\text{U}$  respectivamente. Los periodos de semidesintegración de estos dos isótopos son 55,6 s para el torón y 4 s para el actinión. Debido a la corta vida de estos, los estudios se centran normalmente en el  $^{222}\text{Rn}$ , excepto en casos especiales donde pueda haber concentraciones significativas de torón.

Algunas aguas termales pueden tener altas concentraciones de radio y radón. Por ejemplo, estudios realizados en balnearios españoles proporcionan concentraciones de radón superiores a 1800 Bq/l y a 29 Bq/l para el radio<sup>[2]</sup>. La liberación de radón a través del agua en el entorno de balnearios puede plantear un riesgo para la salud de los trabajadores de las instalaciones termales, así como para los pacientes.

Dependiendo del tipo de suelo, propiedades de la roca y contenido de uranio y torio del acuífero, las concentraciones de radón pueden ser muy dispares. Además la situación del radio respecto a la superficie o poro de la roca, hace que una fracción de radón esté disponible para ser transportado. Solo el radón producido dentro de menos de una fracción de micrómetro, será capaz de alcanzar el espacio de los poros. Incluso altas concentraciones de radio en la mayor parte de minerales pesados no producirán altas concentraciones de radón en el espacio poroso. Por otra parte, bajas o moderadas concentraciones de radio pueden desembocar en altas concentraciones de radón si el radio es absorbido en la superficie de los granos. Por ejemplo, suelos arcillosos con un contenido apreciable de uranio puede dar lugar a bajas concentraciones de radón debido a la propia permeabilidad del suelo. Sin embargo, rocas calizas muy fracturadas con un contenido de 5 a 10 veces inferior a las arcillas pueden constituir una fuente de radón apreciable, permitiendo el transporte del mismo hasta la superficie<sup>[3]</sup>.

## 1.1 Comportamiento físico y químico

El radón según la tabla periódica de Mendeleiev, pertenece al grupo de los gases nobles. Entre los que se encuentran el helio (He), neón (Ne), argón (Ar), kriptón (Kr) y xenón (Xe). Este grupo posee una serie de propiedades muy similares, son gases monoatómicos inodoros, incoloros y presentan una reactividad química muy baja. Esta baja reactividad puede ser explicada por su configuración electrónica de orbitales internos completamente ocupados, que dota a los elementos de este grupo una gran estabilidad química. Por tanto el comportamiento del radón está básicamente controlado por procesos físicos y no por interacciones químicas. No se conocen compuestos estables a temperatura ambiente y presión atmosférica.

En condiciones normales de presión y temperatura ( $T=0^{\circ}\text{C}$  y  $p=1\text{ atm}$ ), el radón tiene una densidad de  $9,73\text{ kg/m}^3$ , lo que le convierte en el gas más denso de la naturaleza. De todos los gases nobles, es el más soluble en agua. Tiene alta movilidad debido a que se trata de un gas. Su solubilidad puede ser incrementada en presencia de altas concentraciones de fluoruros<sup>[4]</sup>. Este efecto se puede explicar mediante un proceso físico más que químico, ya que no es probable que el radón pueda formar compuestos de flúor. Se sugiere por tanto, que parámetros tales como el fenómeno de micro-burbuja o la difusión se ven afectados por la presencia de fluoruros, reduciendo la movilidad de radón. El fenómeno de micro-burbuja, que se puede lograr con gradientes de presión, y/o procesos de difusión, es atractivo para explicar el transporte del gas en el agua.

Las moléculas de gas atrapadas en la masa de un líquido con el que entran en contacto se disuelven en él a excepción de que ocurra una reacción química. Puesto que el radón es químicamente inerte, la cantidad de gas que se disuelve en agua, según la ley de Henry, es directamente proporcional a la presión parcial del gas. Pero también depende de la facilidad que tiene el gas para disolverse en dicho líquido, es decir, de su coeficiente de solubilidad.

El coeficiente de solubilidad para el radón viene dado por el coeficiente de Ostwald, se define como la relación entre la concentración de radón en agua ( $C_{\text{Rn,agua}}$ ) y aire ( $C_{\text{Rn,aire}}$ ) cuando se ha alcanzado el equilibrio mediante la ecuación:

$$K_{\text{ostwald}} = \frac{C_{\text{Rn,agua}}}{C_{\text{Rn,aire}}} \quad (1)$$

La concentración de radón denota en realidad concentración de actividad o actividad por unidad de volumen, es decir, el número de desintegraciones que se producen por unidad de tiempo y volumen. En el Sistema Internacional la unidad de

actividad es del Bequerelio (Bq), que corresponde a una desintegración por segundo. Se puede definir el coeficiente de Ostwald de esta manera puesto que la actividad es proporcional al número de átomos.

La dependencia del coeficiente de Ostwald con la temperatura<sup>[5]</sup> a presión de 1 atm viene dada por:

$$K_{\text{ostwald}} = 0,425 \cdot \exp(0,05 \cdot T_{\text{agua}} (\text{°C})) + 0,1 \quad (2)$$

donde  $T_{\text{agua}} (\text{°C})$  es la temperatura del agua expresada en Celsius.

El intervalo en el cual el coeficiente de Ostwald es una buena aproximación para la solubilidad del radón, es en el rango de 0-40 °C como se muestra en la figura 1. La solubilidad en este intervalo disminuye con la temperatura, es decir, aumenta la concentración de radón en el aire con respecto a la del agua.

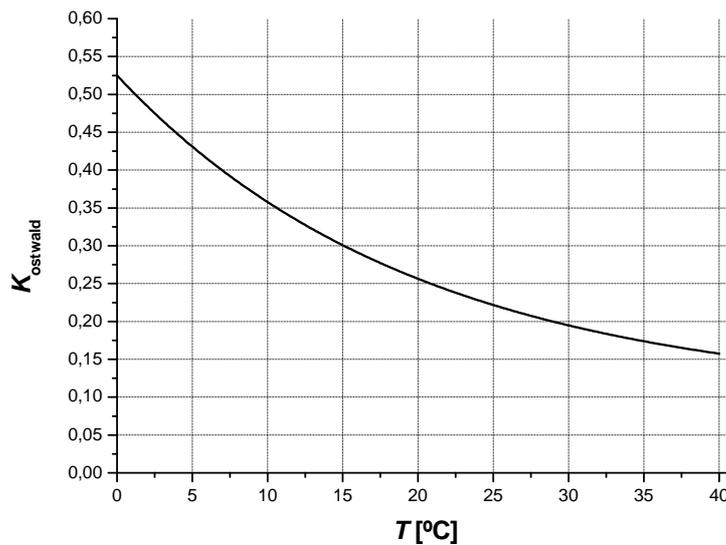


Figura 1. Representación gráfica del coeficiente de Ostwald, solubilidad del radón, en función de la temperatura a presión de 1 atm. Valores representados a partir de la Ec. 2.

En sistemas difusivos, debido a su baja movilidad y a su corto periodo de semidesintegración (3,8 días), el radón obviamente no puede provenir de grandes profundidades. Sin embargo, se espera que el radón provenga de una zona profunda cuando es extraído por un gas ascendente o una columna de agua. En este último caso, el radón siendo incorporado al fluido durante las últimas etapas del proceso, puede ser utilizado como trazador, actuando como un medidor de flujo relativo y medidor de la velocidad del fluido. Generalmente la actividad de radón aumenta con el incremento de flujo (la velocidad de extracción del gas es mayor, disminuyendo el tiempo disponible

para el decaimiento radiactivo). Aunque flujos excesivos pueden conducir a un descenso de la concentración de radón debido a la dilución del mismo<sup>[7]</sup>.

El radón es conocido por estar asociado a fumarolas y aguas termales. Por lo general, debido a sus propiedades, es transportado por las aguas subterráneas. Estas características permiten usar el radón como una herramienta para el mapeo y determinación de la dinámica de un sistema hidrotermal, para detectar fallas en terrenos volcánicos, caracterizar el flujo de aguas subterráneas, y su monitorización en continuo ha sido utilizada para la predicción de terremotos<sup>[7]</sup>.

Como se ha visto anteriormente, el comportamiento del radón está básicamente determinado por procesos físicos debido a su química inerte. Sin embargo, la concentración de radón puede estar indirectamente afectada por interacciones químicas debido a que su progenitor, el  $^{226}\text{Ra}$ , es altamente reactivo.

El radio una vez disuelto, está disponible para diferentes reacciones químicas que conducen a una amplia incorporación en carbonatos, sulfatos, hidróxidos, óxidos y sales. Al pertenecer al grupo de los alcalino-térreos, el número de oxidación es +2, formando compuestos como  $\text{Ra}^{2+}$ . Su movilidad y absorción se ve altamente influenciada por parámetros físico-químicos. Para que el radio constituya una fuente eficiente de radón, una vez disuelto debe ser absorbido por la superficie de las rocas y minerales del acuífero<sup>[17]</sup>, evitando así la pérdida o dilución de la concentración de radio en el agua durante procesos de alto flujo o recarga del acuífero. Altas concentraciones del total de sólidos disueltos<sup>a</sup> (TDS) pueden inhibir/impedir la absorción de radio<sup>[1][6]</sup>, conduciendo a altas concentraciones en el agua subterránea. Esto puede ser debido a: competición entre cationes, incremento de la carga en la superficie de rocas y minerales, y/o a la formación de compuestos de radio con los propios TDS.

Condiciones de bajo potencial redox disminuyen la absorción de radio mediante la reducción del campo de estabilidad de minerales sulfato, permitiendo una mayor solución de metales alcalino-térreos y/o mediante la inhibición de la formación de superficies de Mn-óxidos y Mn-hidróxidos, ambos conocidos como potentes absorbentes de radio.

En condiciones neutras o alcalinas, pH de 7-14, la presencia de capas de arcilla puede hacer que el radio en disolución ( $\text{Ra}^{2+}$ ) pueda reemplazar al sodio de las arcillas. Aunque un pH ácido menor de 5 puede disminuir significativamente la absorción de radio, y variaciones del mismo están relacionadas con variaciones de TDS, aunque

---

<sup>a</sup> TDS es la abreviatura en inglés de Total Dissolved Solids. Es la cantidad total de iones móviles cargados, incluyendo minerales, sales o metales que están disueltos en un volumen de agua.

puede que no se encuentren fuertes correlaciones entre el pH y las concentraciones de  $^{226}\text{Ra}$  o  $^{222}\text{Rn}$ <sup>[6]</sup>.

## 1.2 Radón y descendientes

Las tres series radiactivas naturales, denominadas según los isótopos que las inician  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  y  $^{235}\text{U}$  respectivamente finalizan en isótopos estables del plomo, no sin antes pasar por decenas de elementos radiactivos que emiten radiaciones alfa ( $\alpha$ ), beta ( $\beta$ ) y gamma ( $\gamma$ ). Como se ha mencionado anteriormente, existen tres isótopos del radón. El isótopo más importante tanto en abundancia en la naturaleza como por su periodo de semidesintegración respecto a los otros dos, es el  $^{222}\text{Rn}$ . Denominado comúnmente como radón, mientras que al  $^{220}\text{Rn}$  y  $^{219}\text{Rn}$  se les denota como torón y actinión debido a que el  $^{220}\text{Rn}$  pertenece a la serie radiactiva del torio y a que uno de los predecesores del  $^{219}\text{Rn}$  es el actinio. Estos tres isótopos se desintegran en polonio tras la emisión de una partícula alfa. Puesto que el  $^{219}\text{Rn}$  tiene un periodo de semidesintegración de unos 4 segundos carece de interés radiológico. A continuación se muestran las cadenas radiactivas del torón y radón a partir de sus predecesores  $^{224}\text{Ra}$  y  $^{226}\text{Ra}$ :

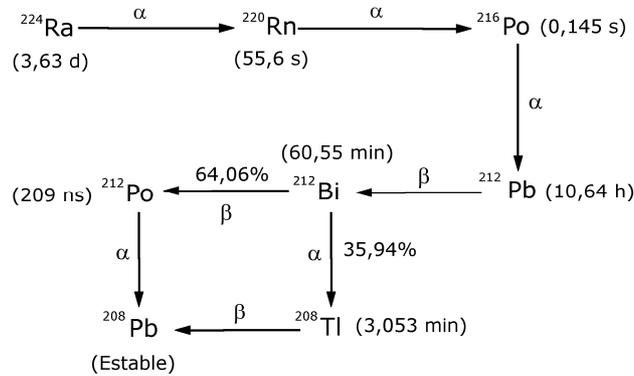


Figura 2. Esquema de la cadena radiactiva del  $^{232}\text{Th}$  a partir del  $^{224}\text{Ra}$  hasta el isótopo estable de plomo  $^{208}\text{Pb}$ . Se indica en cada caso el tipo de desintegración, alfa o beta, así como núcleo al que da lugar. El tiempo entre paréntesis denota el periodo de semidesintegración. En el caso de existir varias vías de desintegración se muestra la probabilidad de cada vía en forma de porcentaje.

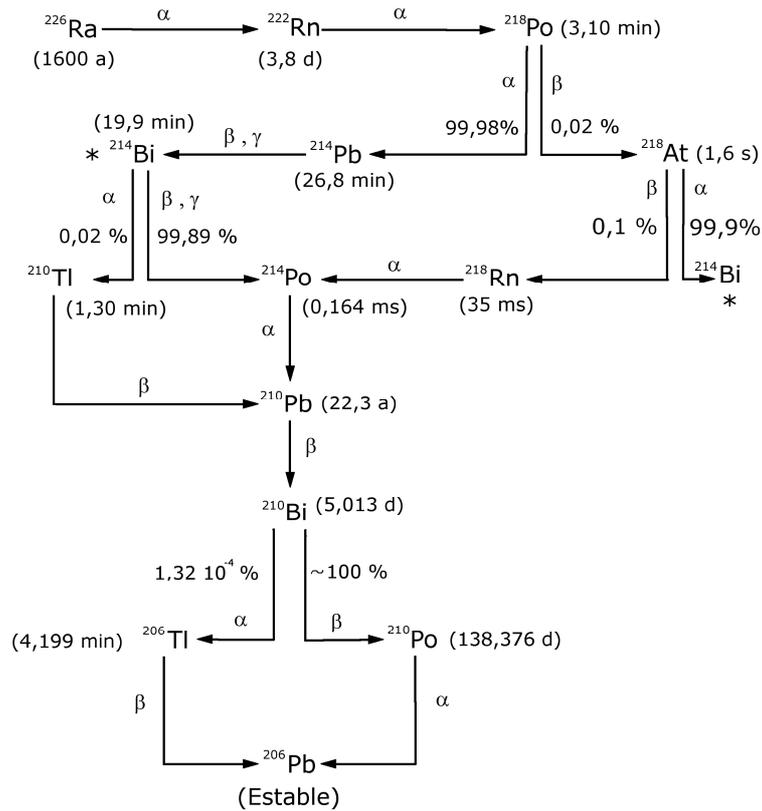
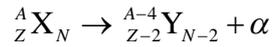


Figura 3. Esquema de la cadena radiactiva del  $^{238}\text{U}$  a partir del  $^{226}\text{Ra}$  hasta el isótopo estable de plomo  $^{206}\text{Pb}$ . Se indica en cada caso el tipo de desintegración, alfa o beta, así como núcleo al que da lugar. El tiempo entre paréntesis denota el periodo de semidesintegración. En el caso de existir varias vías de desintegración se muestra la probabilidad de cada vía en forma de porcentaje. Para los núcleos  $^{214}\text{Pb}$  y  $^{214}\text{Bi}$  se indica que sufren desexcitaciones nucleares gamma ( $\gamma$ ) debido a su interés en métodos de detección.

Como se observa en las figuras anteriores, el radón y algunos de sus descendientes se desintegran emitiendo una partícula alfa. Este tipo de desintegración es debida a un efecto de repulsión de Coulomb. Se hace cada vez más importante para núcleos pesados puesto que la energía repulsiva de Coulomb aumenta con el tamaño del núcleo de una manera muy rápida (con el número atómico al cuadrado,  $Z^2$ ). Mientras que la fuerza de ligadura (binding force) aumenta con el número de nucleones  $A$ .

La emisión espontánea de una partícula alfa ( $\alpha$ ) puede venir representada por el siguiente proceso:



donde X representa el núcleo padre, Y el núcleo resultante, Z el número atómico o de protones, N el número de neutrones y A el número de nucleones, protones mas neutrones.

La partícula  $\alpha$  es un núcleo de helio  ${}^4\text{He}$ , que consiste en dos protones y dos neutrones. Tras el análisis de conservación de energía, momento lineal y angular, se llega a que la energía liberada en el proceso de decaimiento alfa es<sup>[8]</sup>:

$$Q_\alpha = (m_X - m_Y - m_\alpha)c^2 \quad (3)$$

donde  $m_X$ ,  $m_Y$  y  $m_\alpha$ , son las masas del núcleo padre, del núcleo resultante y de la partícula alfa respectivamente. c es la constante de la velocidad de la luz.

La energía liberada  $Q_\alpha$  es también igual a la energía cinética total dada a los fragmentos de desintegración:

$$Q_\alpha = E_Y + E_\alpha \quad (4)$$

Si el núcleo original X esta en reposo, el momento lineal total es cero. Y según el principio de conservación del mismo, se requiere que la partícula alfa y el núcleo resultante se muevan con el mismo momento en sentidos opuestos:

$$p_\alpha = p_Y \quad (5)$$

La energía típica liberada en un decaimiento alfa es del orden del MeV. Por tanto, la energía cinética para Y y  $\alpha$  es  $E_{Y,\alpha} \ll mc^2$  y se pueden utilizar las ecuaciones no relativistas. Escribiendo  $E=p^2/2m$  y a partir las ecuaciones 4 y 5 se llega a que la energía cinética de la partícula alfa es:

$$E_\alpha = \frac{Q_\alpha}{(1 + m_\alpha / m_Y)} \quad (6)$$

Como el ratio de masas es muy pequeño ya que Y representa un núcleo pesado con  $A \gg 4$ . Se puede hacer la siguiente aproximación:

$$E_\alpha \approx Q_\alpha \left(1 - \frac{4}{A}\right) \quad (7)$$

Típicamente la partícula alfa se lleva el 98% de la energía  $Q_\alpha$ . Dejando al núcleo pesado solo un 2% de esta. El retroceso que sufre el núcleo pesado no es completamente insignificante. Si la energía implicada  $Q_\alpha$  es el orden de 5 MeV, el núcleo pesado retrocederá con una energía de unos 100 keV. Esta energía puede superar ampliamente la energía de cohesión en los sólidos provocando que el núcleo escape del sólido si se encuentra cerca de superficie del mismo. De hecho, este fenómeno es el responsable de la disponibilidad de átomos de radón en los poros del terreno a través del proceso denominado emanación.

Algunas de las medidas experimentales para determinar la actividad/concentración de radón se basan en la medida de la energía cedida a un material por la partícula alfa que desprenden algunos de sus descendientes. A partir de la ecuación (7) se puede saber que energía cinética caracteriza a la partícula alfa en cada caso. Otra de las técnicas empleadas es la denominada técnica de la espectrometría gamma (ver apartado 2.2.1), se basa en la detección de los fotones gamma que emiten algunos núcleos que se encuentran en estados nucleares excitados. En este caso, la condición necesaria para determinar la actividad de radón a partir de las emisiones gamma de sus descendientes de vida corta es que todos ellos se encuentren en equilibrio, es decir, que la actividad (numero de desintegraciones por unidad de tiempo) del radón sea la misma que la de los descendientes utilizados. Esto se consigue cuando se tiene la muestra de radón y descendientes confinados en un volumen cerrado.

Si se tiene una muestra radiactiva con una probabilidad de desintegrarse por unidad de tiempo  $\lambda$  (característica de la especie nuclear). La actividad, número de núcleos que se desintegran por unidad de tiempo, viene dada por:

$$A = \frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (8)$$

Resolviendo la ecuación anterior y teniendo en cuenta que inicialmente ( $t = 0$ ) se tiene un número de núcleos  $N_0$ . Según la ecuación fundamental del decaimiento radiactivo el número de núcleos de muestra en cada instante de tiempo es:

$$N(t) = N_0 \cdot \exp(-\lambda t) \quad (9)$$

A partir de la Ec.9 se obtiene el periodo de semidesintegración  $T_{1/2}$  que se define como el tiempo al cabo del cual el número de núcleos se ha reducido a la mitad ( $N=N_0/2$ ):

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (10)$$

En el caso de un núcleo radiactivo que a su vez provenga de otro, la Ec.8 se modifica debido a los núcleos procedentes de la desintegración de su progenitor de la forma:

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (11)$$

donde los subíndices 1 y 2 hacen referencia a los núcleos padre e hijo respectivamente.

Sustituyendo  $N_1$  en la ecuación anterior según la Ec.9 y suponiendo que inicialmente solo se tiene núcleos del padre, resolviéndola se obtiene:

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_0 \left( e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right) \quad (12)$$

Expresando las ecuaciones 9 y 12 en forma de actividad, se obtiene por tanto para el padre y el hijo:

$$A_1 = \lambda_1 N_0 \cdot e^{-\lambda_1 t} = A_1(0) \cdot e^{-\lambda_1 t} \quad (13)$$

$$A_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot A_1(0) \left( e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right)$$

Si el periodo del padre es bastante más grande que el del hijo ( $T_{1/2,1} \gg T_{1/2,2}$ ,  $\lambda_2 \gg \lambda_1$ ), al cabo de un determinado intervalo de tiempo las actividades  $A_1$  y  $A_2$  se igualarán:

$$A_1(t) = A_2(t) = A_1(0) \cdot \left( 1 - e^{-\lambda_2 t} \right) \quad (14)$$

En el caso de tener una cadena radiactiva como a la que pertenece el  $^{222}\text{Rn}$  (ver Fig.3), la actividad de cada descendiente se puede obtener a partir de las ecuaciones de Bateman:

$$A_n(t) = N_0 \sum_{i=1}^n c_{ni} e^{-\lambda_i t}, \quad c_{ni} = \frac{\prod_{k=1}^n \lambda_k}{\prod_{k=1, k \neq i}^n (\lambda_k - \lambda_i)} \quad (15)$$

La actividad en función del tiempo para el radón y sus cuatro descendientes de vida corta más importantes, viene representado en la siguiente figura:

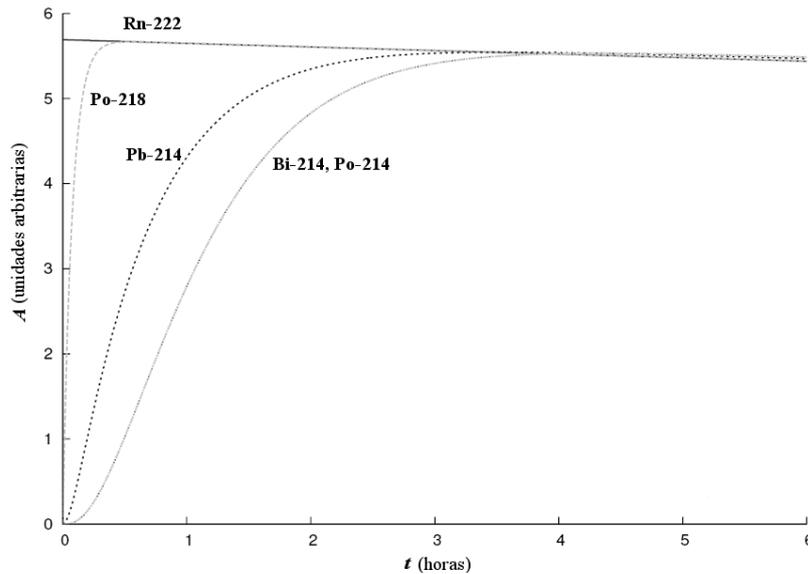


Figura 4. Actividades del radón y descendientes de vida corta en función del tiempo.

Se puede observar que a las tres horas, la actividad del radón y sus descendientes difiere en un 5%, y a las tres horas y media se alcanza el equilibrio secular. Se observa también que debido al periodo extremadamente corto del  $^{214}\text{Po}$  (0,164 ms), su actividad es siempre igual al de su progenitor el  $^{214}\text{Bi}$ .

### 1.3 Irradiación por exposición a radón

La exposición a la radiación ionizante puede dañar las células vivas, causando la muerte de algunas de ellas y modificando otras. La mayoría de los órganos y tejidos del cuerpo no se ven afectados por la pérdida de un número considerable de células. Sin embargo en dosis elevadas, si ese número es lo suficientemente grande, el daño a los órganos puede conducir a la muerte. Este daño se produce en personas que están expuestas a la radiación por encima de un nivel umbral.

El riesgo derivado de la exposición a radiaciones ionizantes presente para todo el rango de dosis se debe a la posibilidad de modificaciones genéticas de las células sin matarlas. Este tipo de daño es normalmente reparado, pero si la reparación no es completa, la modificación resultante se transmite a las células en división y eventualmente puede producir cáncer. Si las células modificadas son las que transmiten la información hereditaria a los descendientes del individuo expuesto, pueden surgir trastornos hereditarios.

La irradiación de las personas por exposición al radón se produce por su carácter gaseoso, que hace posible su acumulación en recintos cerrados como viviendas, balnearios, cuevas o minas, alcanzando concentraciones elevadas. Este hecho es especialmente notable en aquellas regiones que, por la composición geológica de sus suelos y rocas, presentan altos niveles de radiación natural. La irradiación que el radón y sus descendientes de vida corta producen en el hombre se debe principalmente a su inhalación.

Cuando se inhala gas radón, sus productos de desintegración ( $^{218}\text{Po}$  y  $^{214}\text{Po}$ ) se depositan en los pulmones, donde las partículas alfa que emiten pueden interaccionar con tejidos biológicos causando daños en el ADN. Puesto que incluso una única partícula alfa puede causar un daño genético importante en una célula, es posible que el efecto negativo en el ADN pueda producirse a cualquier nivel de exposición. Por tanto, es improbable que haya un umbral de concentración por debajo del cual el radón no tenga el potencial necesario para causar cáncer de pulmón<sup>[21]</sup>.

En 1988 el radón fue clasificado como carcinógeno humano por la Agencia Internacional para la Investigación del Cáncer, agencia especializada en la investigación del cáncer de la OMS, a partir de estudios epidemiológicos realizados en trabajadores de minas de uranio. En la actualidad el radón está reconocido como la segunda causa de cáncer de pulmón en la población tras el tabaco. La mayoría de dichos cánceres se producen entre personas fumadoras debido al efecto sinérgico de ambos. Estimaciones recientes en diversos países sitúan la proporción de cánceres atribuibles al radón entre el 3 y el 14 %, dependiendo de la concentración media de radón en el país correspondiente y los métodos utilizados para su cálculo. Los análisis indican que el riesgo de padecer cáncer aumenta proporcionalmente con la exposición al radón. Puesto que la mayor parte de la gente se encuentra expuesta a bajas y moderadas concentraciones de radón, la mayoría de los cánceres de pulmón relacionados con el radón son causados por estos niveles de exposición en lugar de por concentraciones altas.

La magnitud utilizada para expresar la exposición de un material tal como el cuerpo humano a la radiación ionizante, es la dosis absorbida cuya unidad es el gray (Gy). Sin embargo, los efectos biológicos por unidad de dosis absorbida varían con el tipo radiación y la parte del cuerpo expuesta. Para tener en cuenta dichas variaciones, se utiliza la magnitud ponderada dosis efectiva, cuya unidad es el sievert (Sv).

Todo el mundo por el simple hecho de vivir en el planeta tierra está expuesto a la radiación ionizante de origen natural. Las fuentes naturales de radiación son los rayos cósmicos y las sustancias naturales radiactivas existentes en la propia Tierra y en el interior del cuerpo humano. Una contribución significativa a la exposición natural de los seres humanos es la debida al gas radón, aproximadamente un 50% de la misma. El nivel de radiación natural varía de unos sitios a otros del planeta, normalmente un factor

3. En algunas localizaciones, puede alcanzarse niveles diez o cien veces superiores a la media<sup>[15]</sup>.

Las actividades humanas que implican radiación ionizante o sustancias radiactivas causan exposición a la radiación, además de la natural. Algunas de estas actividades simplemente aumentan la exposición a fuentes naturales. Algunos de los ejemplos son la extracción y uso de minerales que contengan sustancias naturalmente radiactivas y la producción de energía por combustión de carbón que contiene dichas sustancias. Tales actividades humanas constituyen sólo una pequeña fracción del nivel medio global de exposición natural. Sin embargo, los individuos que residen cerca de las instalaciones en las que se libera material radiactivo al medio ambiente pueden estar sujetos a una mayor exposición.

De las actividades humanas, la más importante respecto al incremento de exposición se refiere, es la actividad médica que usa radiación ionizante. Entre ellas se incluye el radiodiagnóstico, la radioterapia, la medicina nuclear y la radiología intervencionista. Un gran número de personas (en los países en desarrollo, en particular) todavía no se pueden aprovechar de muchos de estos procedimientos médicos, debido a que no están disponibles en todo el mundo. Por el momento, por lo tanto, esas personas reciben menos radiación por diagnóstico y tratamiento médico que las personas que viven en países que se benefician de estos procedimientos.

Según el Comité Científico de las Naciones Unidas sobre los Efectos de la Radiación Atómica (UNSCEAR), la dosis media para la población española es de 3,7 mSv/año, de los cuales 2,4 mSv son debidos a la radiación natural (valor medio mundial). En la siguiente figura se muestra la dosis promedio para una persona que viva en España, cada sector refleja el porcentaje medio respecto a la dosis total.

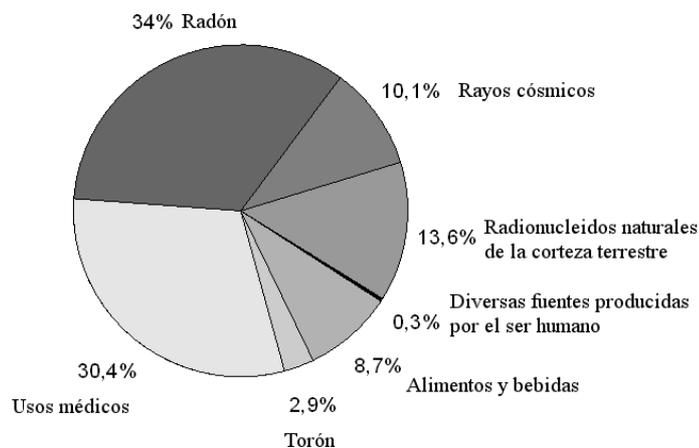


Figura 5. Porcentajes de dosis media anual recibida por la población española correspondiente a cada fuente de radiación ionizante<sup>[16]</sup>. La dosis media anual en España es de 3,7 mSv.

## 1.4 Exposición profesional (Instrucción IS-33)

La instrucción IS-33<sup>[19]</sup>, del 21 de diciembre de 2011, creada por el consejo de seguridad nuclear (CSN), establece los criterios radiológicos para la protección frente a la exposición de la radiación natural. El 26 de enero del 2012 se publica dicha instrucción en el boletín oficial del estado (BOE), teniendo por tanto aplicación legal.

El objeto de la instrucción es establecer criterios radiológicos sobre los siguientes aspectos relacionados con la exposición a la radiación natural en lugares de trabajo:

- Valores de dosis efectiva a los trabajadores cuya superación requeriría la adopción de medidas correctoras o dispositivos de vigilancia.
- Concentraciones de radón en lugares de trabajo cuya superación requeriría la adopción de medidas correctoras o dispositivos de vigilancia.
- Aplicación total o parcial de los títulos del RPSRI<sup>b</sup> citados en el título VII, en los casos en los que los resultados de los estudios demuestren que se han superado los niveles de dosis efectiva establecidos o las concentraciones de radón.

A continuación se van a describir exclusivamente los criterios establecidos por la instrucción IS-33 referentes a la exposición de radón:

El nivel de referencia que se toma para la concentración media anual de <sup>222</sup>Rn en los puestos de trabajo durante el horario laboral es de 600 Bq/m<sup>3</sup>. Por debajo de este nivel se deben aplicar los principios de optimización. Sin embargo, si se supera dicho nivel de referencia se deben aplicar las correspondientes medidas de protección radiológica, en el caso de que una vez realizadas acciones de remedio no se consiguiera reducir la concentración de radón. Se entiende por acciones de remedio aquellas destinadas a disminuir la concentración de radón.

Los niveles de referencia para las actuaciones indicadas en el artículo 63 del RPSRI, deben ser los siguientes:

- < 600 Bq/m<sup>3</sup>: no es necesario control.
- 600-1000 Bq/m<sup>3</sup>: se debe aplicar un nivel bajo de control.
- > 1000 Bq/m<sup>3</sup>: se debe aplicar un nivel alto de control.

---

<sup>b</sup> RPSRI: Reglamento de Protección Sanitaria contra Radiaciones Ionizantes

En el caso de los lugares de trabajo con elevada permanencia de miembros del público el nivel de intervención será de  $300 \text{ Bq/m}^3$  de concentración media anual de  $^{222}\text{Rn}$ . Entendiéndose como lugares de trabajo con elevada permanencia de miembros del público aquellos en los que los miembros del público puedan permanecer una cantidad de horas superior al horario laboral.

Las actividades laborales cuyos titulares deberían realizar los estudios requeridos por el RPSRI son las que se llevan a cabo en los lugares de trabajo siguientes:

1. Lugares de trabajo subterráneos como:
  - Cuevas y galerías.
  - Minas distintas de las del uranio.
2. Establecimientos termales.
3. Instalaciones donde se almacenen y traten aguas de origen subterráneo.
4. Lugares de trabajo, subterráneos o no subterráneos, en áreas identificadas por sus valores elevados de radón.
5. Extracción de tierras raras.
6. Producción y utilización del torio y sus compuestos.
7. Producción de niobio y ferro-niobio.
8. Producción de gas y petróleo.
9. Producción de cemento, mantenimiento de hornos de «clinker».
10. Fabricación de pigmentos de dióxido de titanio.
11. Industria del fosfato (producción de ácido fosfórico y de fertilizantes fosfatados).
12. Industria del zirconio.
13. Producción de estaño, cobre, aluminio, hierro, acero, cinc y plomo.
14. Centrales térmicas de carbón.

En aquellas actividades donde no se supere el nivel de referencia anual de  $600 \text{ Bq/m}^3$  no es necesario aplicar medidas de control pero sí realizar una reevaluación de la exposición cada cinco años. Aunque se llevará a cabo si se han realizado cambios en la actividad que pueda suponer un aumento significativo de la concentración radón.

En el caso de tener concentraciones medias anuales comprendidas entre  $600-1000 \text{ Bq/m}^3$  se aplicaran las siguientes medidas de control:

- Vigilancia radiológica del ambiente de trabajo de acuerdo con lo indicado en el artículo 26 del RPSRI.
- Estimación anual de dosis efectivas individuales.
- El titular de la actividad deberá informar a los trabajadores sobre los riesgos radiológicos existentes en dicha actividad laboral. Así como las precauciones que se deben adoptar.

En aquellas actividades en las que el incremento de exposición de los trabajadores supere alguno de los valores indicados en el punto anterior, se aplicarán con carácter general los principios de protección radiológica operacional establecidos en el Título IV del RPSRI<sup>[20]</sup>.

## 1.5 Objetivos

Este estudio se centra principalmente en dos objetivos. Ambos se basan en la medición en continuo de radón ( $^{222}\text{Rn}$ ) disuelto en el agua y el aire de una instalación termal, así como de una serie de parámetros físico-químicos.

El primero de los objetivos se fundamenta en la caracterización del término fuente de gas radón en el aire interior de las instalaciones del balneario. Para ello, se ha monitorizado el radón disuelto en el agua como trazador natural para evaluar la dinámica de transferencia al aire, así como poder determinar la dinámica del acuífero y encontrar las fuentes de radón en la instalación termal.

El segundo objetivo se centra principalmente en la protección radiológica. En el estudio y determinación de las dosis que reciben tanto trabajadores como pacientes debidas al radón. Actualmente a parte de la primordial importancia de la salud, la instrucción IS-33 (ver apartado 1.4) establece entre otras cosas los criterios radiológicos y concentraciones de radón en el aire que no se deben superar en una instalación termal, convirtiéndose en necesaria la evaluación y determinación de dicha concentración.

## 2. Material y métodos

### 2.1 Área de estudio: Balneario Las Caldas de Besaya

El balneario Las Caldas de Besaya se encuentra situado a orillas del 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 Santander, capital de la comunidad autónoma de Cantabria, España (ver Fig.6). Las aguas termales de este balneario se caracterizan por tener un temperatura entre 34 a 37 °C y una composición clorurado-sódicas, bicarbonatadas y nitrogenadas<sup>[9]</sup>. Esta fuente termal está asociada a la gran falla cabalgante del Escudo de Cabuérniga, que, procedente de los picos de Europa, corre paralelamente a la costa por el sur de dicho escudo. El tipo de roca de esta zona es de origen sedimentario, en su mayor parte calizas grises, dolomías y carniolas<sup>[27]</sup>.

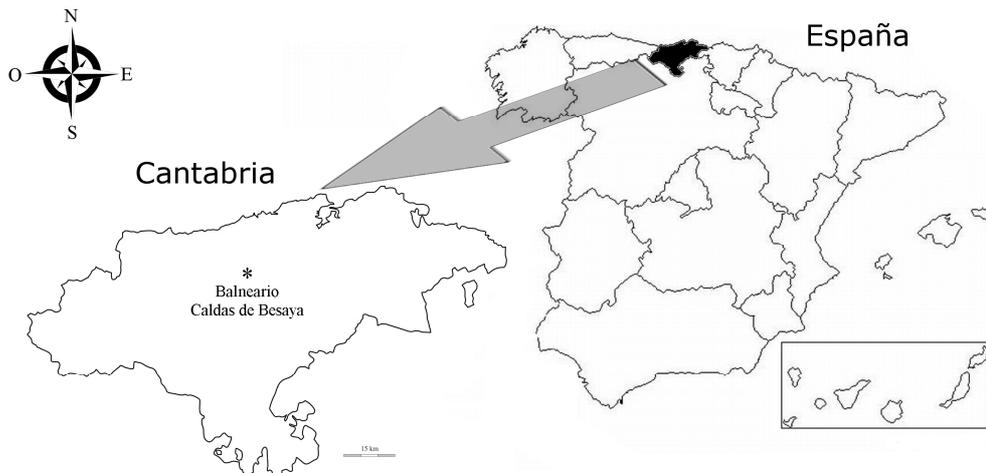


Figura 6. Localización del balneario Las Caldas de Besaya, Cantabria, España.

El periodo de apertura anual del balneario suele ser de marzo a diciembre en horario de mañana. Entre los servicios y técnicas de tratamiento, cuenta entre otros con baños, chorros, duchas circulares, baños de burbujas, inhalaciones, pulverizaciones, sauna, masaje subacuático y masaje manual. El esquema de la denominada sala de termas donde se realizan dichas actividades, que está situada en el piso inferior al de la sala de entrada al balneario se muestra a continuación:



Figura 7. Esquema de la sala de termas del balneario Las Caldas de Besaya.

Como se observa en la figura anterior, la captación de agua para las instalaciones se realiza mediante una bomba que extrae agua de un pozo exterior al edificio. 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 duchas y tratamientos de chorros. Se tiene constancia que este sistema de extracción de agua funciona diariamente de seis de la mañana a doce del medio día aproximadamente. A parte de esta fuente externa de agua, el balneario cuenta con siete manantiales, siendo el más caudaloso el denominado pozo principal. Durante el funcionamiento de la bomba, parte del agua introducido al balneario va a parar a ese pozo.

El interés que tiene este balneario a parte de lo anteriormente comentado, son los altos niveles de radón de sus aguas que producen elevadas concentraciones de este en el aire<sup>[10]</sup>. Los valores de concentración de radón tanto en agua como en aire obtenidos de estudios anteriores<sup>[10][11]</sup> vienen dados en la siguiente tabla:

	$C_{Rn,agua}$ (Bq/l)	$C_{Rn,aire}$ (Bq/m <sup>3</sup> )
Pozo principal	$820 \pm 50$	10.100-7.770
Pozo exterior	$560 \pm 80$	-
Sala termas	-	3.560-6.650
Entrada	-	580

Tabla 1. Concentraciones de <sup>222</sup>Rn en agua y aire del balneario Las Caldas de Besaya obtenidas de estudios realizados de 1989 a 1991<sup>[10][11]</sup>. En el caso de la concentración de radón en el aire para el pozo principal, la medida se llevó a cabo a 20 cm del agua.

## 2.2 Dispositivo experimental

La determinación de los niveles de  $^{222}\text{Rn}$  en el interior del balneario Las Caldas de Besaya se ha realizado midiendo la concentración del gas, tanto disuelto en el agua como en el aire. La medida de la concentración de radón en el agua que aflora al balneario se ha realizado de forma continua a lo largo de diez meses, entre marzo y diciembre de 2012. En el caso de la medida de la concentración en el aire, el periodo ha comenzado también en marzo de 2012 y se ha prolongado hasta febrero de 2013.

Para determinar la concentración de radón disuelto en el agua se han utilizado dos métodos. El primero se ha realizado de forma continua mediante el dispositivo RTM 2100 y el segundo, puntualmente mediante la técnica de la espectrometría gamma. La medida de la concentración de radón en el aire del interior del balneario se ha llevado a cabo con el dispositivo Radon Scout.

Los dispositivos experimentales RTM 2100 y Radon Scout se han situado en la denominada sala de termas a una distancia de aproximadamente 1 metro del pozo principal (ver Fig.7). Las muestras de agua para analizarlas mediante espectrometría gamma se han tomado del pozo principal, al igual que para la medida en continuo realizada por el RTM 2100. Una de las principales razones que ha llevado a escoger este sitio como toma de muestras y emplazamiento de los dispositivos ha sido el gran volumen y caudal del pozo principal.

### 2.2.1 Medida de radón en agua

#### - RTM 2100

El dispositivo RTM 2100<sup>[12]</sup> está diseñado por la empresa SARAD para medir de forma continua en función del tiempo la concentración de los isótopos  $^{222}\text{Rn}$  y  $^{220}\text{Rn}$ , así como la temperatura ambiente, la humedad relativa, la presión atmosférica y el flujo de aire que entra en el dispositivo, mediante sensores internos. En este caso se ha utilizado la edición GEO-RTM 2100 que permite además de lo anteriormente comentado, medir el pH, el potencial redox, el  $\text{CO}_2$ , la conductividad y temperatura del agua utilizando sensores externos. El esquema de la parte frontal del dispositivo se muestra a continuación:

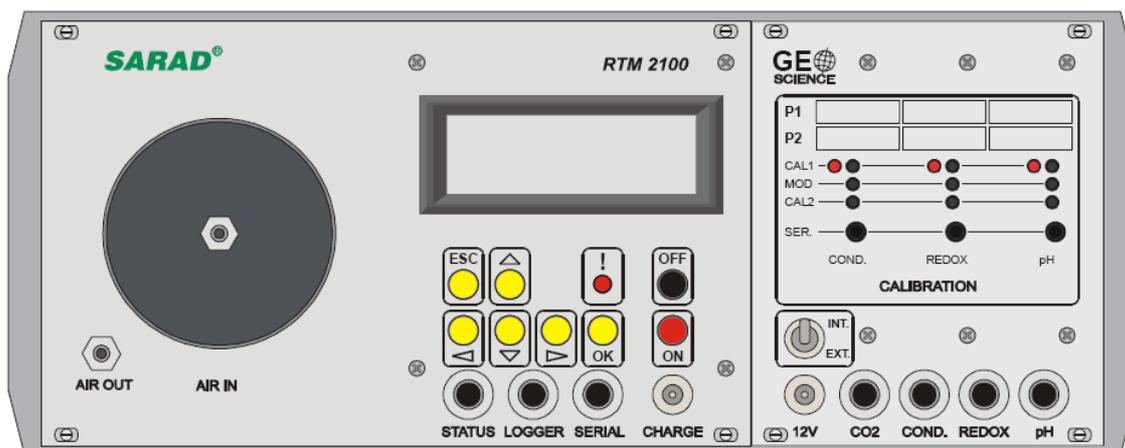


Figura 8. Esquema del dispositivo GEO-RTM 2100.

En la figura anterior se muestran la entrada y salida del aire (AIR IN/AIR OUT) por las cuales una bomba interna introducirá y expulsará aire respectivamente a la cámara interna que posee el detector. Los sensores externos para la medida de CO<sub>2</sub>, conductividad eléctrica, potencial redox y pH se conectan en la parte inferior derecha, entradas: CO<sub>2</sub>, COND., REDOX y pH respectivamente. El panel CALIBRATION incluye entradas para los tres últimos parámetros mencionados anteriormente donde utilizando una solución estándar dada se han calibrado los mismos. El sensor que mide la temperatura del agua está integrado en el de conductividad.

La parte referente a la medida de radón/torón comienza con una bomba interior que genera una corriente de aire que introduce el Rn al interior de la cámara. Dos etapas de filtros previos impiden que los descendientes del radón/torón entren dentro del dispositivo. Por último, dos electrodos de alto voltaje crean una diferencia de potencial entre la pared de la cámara y el detector de silicio (ver Fig.9).

Durante la desintegración del <sup>220</sup>Rn/<sup>222</sup>Rn los nucleidos derivados <sup>216</sup>Po/<sup>218</sup>Po se ionizan. Debido a la existencia de una diferencia de potencial, los descendientes se adhieren a la superficie del detector. El decaimiento alfa de estos descendientes de vida corta son registrados por el detector con una estadística del 50% (solo la mitad de las desintegraciones son contempladas). Así, una medida del contaje de pulsos debidos a la desintegración del <sup>216</sup>Po y <sup>218</sup>Po es una medida de la concentración del <sup>220</sup>Rn y <sup>222</sup>Rn respectivamente. Para aumentar la estadística un factor dos, se puede incluir el <sup>214</sup>Po para la determinación de la concentración de <sup>222</sup>Rn. Como ya se ha visto, el <sup>214</sup>Po pertenece a la cadena adicional del <sup>218</sup>Po (ver Fig.3). Por tanto cada desintegración del <sup>218</sup>Po debe estar seguida de una desintegración del <sup>214</sup>Po. La principal desventaja es que

la respuesta se hace temporalmente más larga debido al periodo de semidesintegración de los núcleos intermedios ( $T_{1/2}({}^{214}\text{Pb})=26,8$  min y  $T_{1/2}({}^{214}\text{Bi})=19,9$  min).

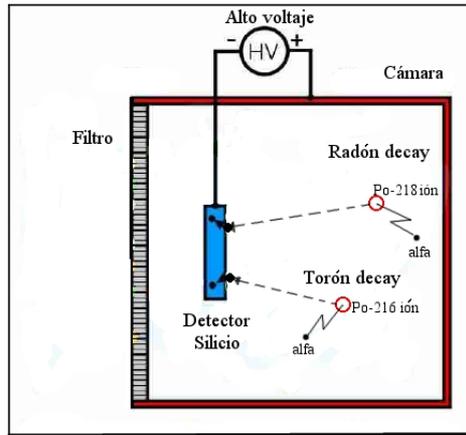


Figura 9. Esquema del sistema de detección. Se muestran los decaimientos del radón y torón a  ${}^{218}\text{Po}$  y  ${}^{216}\text{Po}$  respectivamente.

La eficiencia  $\varepsilon$  de fijación del detector depende principalmente de la humedad absoluta ( $aH$ ) debido a la descarga por moléculas de agua.

$$\varepsilon = f(aH); [\varepsilon] = \text{cuentas}/(\text{min} \cdot \text{kBq} \cdot \text{m}^{-3}) \quad (16)$$

Esta función contiene 3 variables que son calibradas después del proceso de fabricación.

Por tanto la concentración de radón/torón viene dada por:

$$C({}^{222}\text{Rn}/{}^{220}\text{Rn}) = \frac{N}{\varepsilon(aH) \cdot t} \quad (17)$$

donde  $N \equiv$  número de cuentas de  ${}^{218}\text{Po}, {}^{214}\text{Po}/{}^{216}\text{Po}$ .

$t \equiv$  intervalo de tiempo expresado en minutos.

Para separar el contaje obtenido de los isótopos  ${}^{218}\text{Po}, {}^{214}\text{Po}/{}^{216}\text{Po}$  de otros descendientes, el detector está conectado a un sistema de espectroscopía alfa con cuatro ventanas o regiones de interés (ROI's):

ROI 1:  ${}^{218}\text{Po}/{}^{212}\text{Bi}$

ROI 2:  ${}^{216}\text{Po}$

ROI 3:  ${}^{214}\text{Po}$

ROI 4:  ${}^{212}\text{Po}$

Aunque otro de los descendientes del  $^{222}\text{Rn}$ , el isótopo  $^{210}\text{Po}$ , libera en el proceso de decaimiento alfa una energía de  $Q_\alpha = 5,407 \text{ MeV}$ , entrando dentro de la energía que contemplan las ROI's mencionadas anteriormente, no puede incrementar el fondo y alterar las medidas debido a su alto periodo de semidesintegración ( $T_{1/2}(^{210}\text{Po})=138,4$  días). Por otro lado, comparado con los descendientes, el contaje debido al decaimiento alfa del radón y torón es muy bajo puesto que no se adhieren a la superficie del detector. Además no se han encontrado anomalías significativas en el espectro.

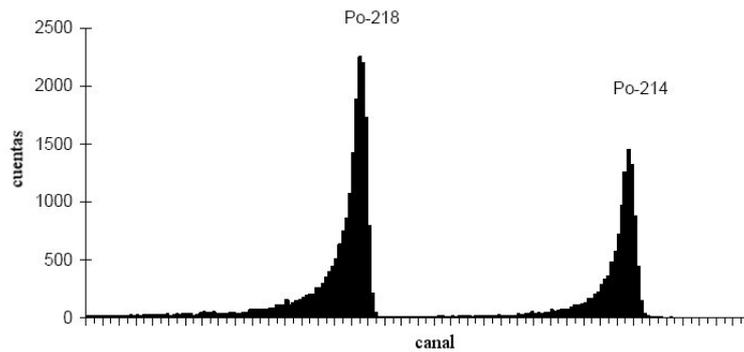


Figura 10. Espectro de una cámara con  $^{222}\text{Rn}$  adquirido por un dispositivo RTM.

Como se observa en la figura anterior, a la izquierda de los picos del espectro se observa una cola. Esta es generada por la capa protectora del detector que hace que las partículas alfa pierdan energía antes de entrar en la parte sensible. Una pequeña superposición de un pico vecino puede alterar las medidas añadiendo cuentas a la ROI como se observa en la figura siguiente:

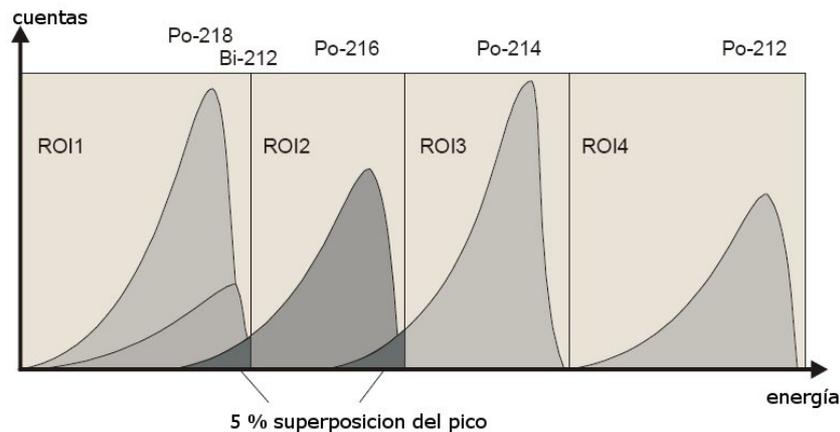


Figura 11. Esquema de las ROI's del dispositivo RTM 2100, así como de los picos del espectro que se observan para cada isótopo y la superposición de alguno de ellos.

Debido a la superposición de los picos, durante el proceso de calibrado se ha realizado la corrección del conteo de cada isótopo. El  $^{212}\text{Bi}$  y el  $^{212}\text{Po}$  pertenecen a la cadena de desintegración del torón. Atendiendo al periodo de cada uno (ver Fig.2) se obtiene una ratio de 1:2 entre ellos. Como el decaimiento alfa que genera el  $^{212}\text{Po}$  es el más energético y no se ve afectado por ningún otro pico, se puede extraer el valor en cuentas que añade el  $^{212}\text{Bi}$  al pico del  $^{212}\text{Po}$ . Ya que ambos picos no se pueden separar debido a la diferencia entre ellos de unos 80 keV y a que la resolución del detector no lo permite.

El dispositivo tiene dos modos de tiempo de medida, fast y slow. Puesto que el decaimiento radiactivo es un proceso aleatorio y cada evento tiene asociado un error estadístico. Se ha de tomar un intervalo de tiempo que incluya el mayor número de desintegraciones posibles para mantener la incertidumbre tan baja como razonablemente sea posible. En nuestro caso como la finalidad es medir exclusivamente  $^{222}\text{Rn}$  y sabiendo a priori que existe una concentración alta ( $\sim \text{MBq/m}^3$ ), se ha utilizado el modo de tiempo fast que tiene una respuesta rápida (10 minutos). El tiempo de integración es de 60 minutos. Es decir, se obtiene un valor cada hora. En este modo de tiempo no se incluye el isótopo  $^{214}\text{Po}$  para determinar la concentración de  $^{222}\text{Rn}$ .

A parte del dispositivo GEO-RTM 2100, para la medida en continuo de radón en agua se ha utilizado el "SARAD water kit". Para evitar problemas con la posible entrada de agua en el dispositivo se han separado completamente los circuitos agua-aire. El circuito de agua consta de una bomba que toma agua del pozo y la introduce continuamente en una cazuela de unos 450 ml. El circuito de aire comienza y acaba en las entradas air in y air out del RTM que crea un flujo de aire a partir de una bomba interna. Este circuito entra en la cazuela donde se han utilizado tubos de silicona impermeables al agua, que a su vez permiten el paso de radón. El vapor de agua es susceptible de entrar dentro del circuito. Por eso a continuación se coloca una botella de compensación donde se va a condensar el agua y un secador Peltier que va a eliminar el vapor de agua que no se haya condensado en el paso anterior. Los sensores externos que miden la conductividad eléctrica, el potencial redox y el pH, se introducen en la cazuela por unos orificios diseñados para este fin. A continuación se muestra de forma esquemática el dispositivo experimental descrito:

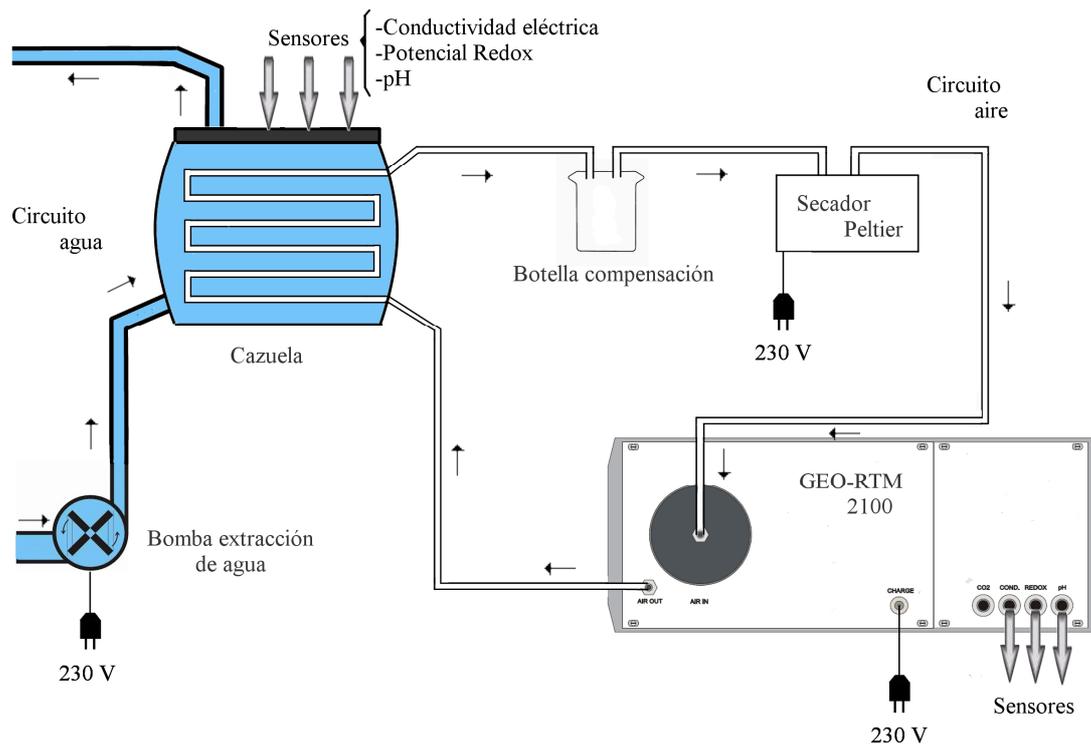


Figura 12. Esquema del dispositivo experimental utilizado para la medida en continuo de radón en agua.

Los datos técnicos del GEO-RTM 2100 más relevantes se muestran a continuación:

Flujo bomba aire	0,35 Lpm aprox.
Sensibilidad	Modo fast/slow: 4,4/9,3 cpm por $1\text{ kBq/m}^3$ (a $20^\circ\text{C}$ y 50% rH)
Rango de medida	$0 \dots 10\text{ MBq/m}^3$
Espectroscopía	256 canales, análisis de cuatro ventanas de energía

<u>Sensores internos</u>	<u>Rango</u>
Humedad	$0 \dots 100\%$ rH $\pm 2\%$ rH (rH $\equiv$ humedad relativa)
Temperatura	$0 \dots 50^\circ\text{C} \pm 0,1^\circ\text{C}$
Presión	$800 \dots 1200$ mBar
Flujo	$0 \dots 3$ Lpm $\pm 0,05$ Lpm

<u>Sensores externos</u>	<u>Rango (<math>0 \dots 80^\circ\text{C}</math>)</u>
pH	$0 \dots 14$
Potencial Redox	$\pm 1000$ mV
Conductividad	$100 \mu\text{ S/cm}$ a $20\text{ mS/cm}$

## - Espectrometría gamma

Esta técnica se basa obtención y análisis de la distribución energética (espectro de energía) de las radiaciones gamma emitidas por una muestra. En este caso se va a analizar el espectro gamma de los descendientes del radón cuando se haya alcanzado el equilibrio secular con los mismos. Es decir, cuando la actividad del radón y la de sus descendientes sea la misma. Para los descendientes de vida corta, el equilibrio secular se alcanza a las 3 horas aproximadamente (ver Fig.4).

La radiación gamma es un tipo de radiación electromagnética, y por tanto constituida por fotones, que se produce cuando un núcleo excitado pasa de un nivel nuclear a otro menos energético, más estable. Este tipo de radiación está asociada a los decaimientos alfa y beta cuando el núcleo predecesor al emitir una de esas dos partículas no decae al nivel fundamental del descendiente, sino que decae a un nivel nuclear excitado.

Para determinar la concentración de radón se ha utilizado la radiación gamma emitida por dos de sus descendientes. Los núcleos utilizados, así como las energías emitidas por cada uno se muestran en la siguiente tabla.

Núcleo	$E_\gamma$ / keV
$^{214}\text{Pb}$	351,9 // 295,2 // 241,9
$^{214}\text{Bi}$	609,3

Tabla 2. Núcleos y energía  $E_\gamma$  de los fotopicos utilizados en la técnica de la espectrometría gamma

Los fotones gamma emitidos por un núcleo tienen diversas energías debido a la cantidad de niveles nucleares excitados a los que puede decaer el núcleo padre. A continuación se muestra el decaimiento del  $^{214}\text{Pb}$  y el esquema de niveles del  $^{214}\text{Bi}$ .

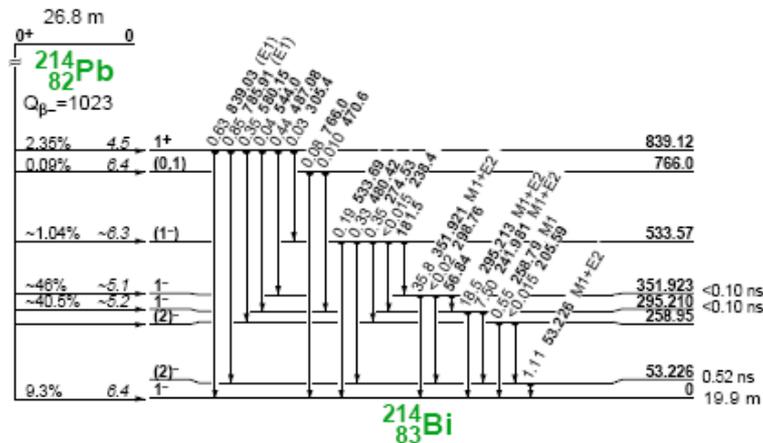


Figura 13. Esquema de decaimiento<sup>[14]</sup> del isótopo <sup>214</sup>Pb. Se muestra el esquema de niveles nucleares excitados del <sup>214</sup>Bi al que puede decaer así como la probabilidad de cada uno y su energía correspondiente expresada en keV.

Para el análisis del espectro gamma se cuenta con un detector de centelleo de yoduro de sodio con impurezas de talio (NaI(Tl)) unido a un fotomultiplicador. El cristal tiene forma cilíndrica de dimensiones (diámetro×altura) 3''×3'' (1''=2,54 cm). Está protegido de la radiación exterior por un castillete de plomo y conectado a un amplificador y un analizador multicanal. El analizador multicanal (MCA) almacena los pulsos eléctricos del amplificador según su altura y, por consiguiente, en función de la energía depositada por los fotones gamma en el detector.

El sistema se ha calibrado utilizando una muestra de <sup>226</sup>Ra de actividad conocida  $A(^{226}\text{Ra})$  en equilibrio con sus descendientes, preparada con la misma geometría que las muestras a medir. Dado un tiempo de medida predeterminado, el contaje obtenido bajo para los fotopicos del <sup>214</sup>Pb y el <sup>214</sup>Bi corresponderá a la actividad conocida del <sup>226</sup>Ra. Para obtener la actividad de una muestra de agua obtenida experimentalmente donde el radón está en equilibrio con sus descendientes se utiliza la siguiente ecuación:

$$A(^{222}\text{Rn}) = A(^{226}\text{Ra}) \frac{c}{c_{\text{calib}}} \quad (18)$$

donde  $c$  y  $c_{\text{calib}}$  son las cuentas bajo los fotopicos del <sup>214</sup>Pb y <sup>214</sup>Bi debido a la muestra de agua y la de calibración respectivamente.

En el cálculo de las cuentas netas de cada fotopico, además de la contribución de los núcleos de plomo y bismuto, se ha de tener en cuenta las debidas tanto al fondo ambiental como al propio ruido electrónico del equipo de medida. Para determinar la contribución del fondo se prepara un recipiente de igual geometría y capacidad con agua

destilada y desionizada, y se obtiene el espectro durante el mismo tiempo de medida que el de la muestra. La diferencia entre ambos contajes son las cuentas netas, debidas al radón presente en la muestra.

## 2.2.2 Medida de radón en aire

### - Radon Scout

El instrumento Radon Scout<sup>[13]</sup> es un dispositivo de la empresa SARAD, versátil y fácil de usar, centrado en la detección de <sup>222</sup>Rn en el aire. Además de la medida de la concentración de radón, proporciona valores de la temperatura y de la humedad relativa.

A diferencia del dispositivo RTM 2100, el radón en este caso es medido por difusión. Es decir, no se utiliza ninguna bomba para atraer el gas. Lo que se consigue de esta forma es excluir la posible influencia del torón.

La cámara de medida, está equipada con un detector de silicio de alto voltaje, no muestra ninguna sensibilidad con la humedad ambiental. La teoría de detección es similar a la descrita para el RTM. En este caso se tiene una única ventana de energía correspondiente a la energía del isótopo <sup>218</sup>Po.

Existen dos intervalos de medida, de una y tres horas. Según recomendaciones del fabricante se ha de escoger el intervalo de tres horas para concentraciones menores de 200 Bq/m<sup>3</sup>. En caso contrario el error estadístico de cada valor será del orden del 20%. En nuestro caso como la concentración es del orden de varios kBq/m<sup>3</sup>, se ha escogido el intervalo de una hora, al igual que para el dispositivo RTM. Para la recolección de datos cada hora, la memoria interna del dispositivo tiene capacidad para 28 días. En caso que se exceda el máximo de datos, los históricamente más antiguos se borrarán sobrescribiéndose con los nuevos.

Los datos técnicos del Radon Scout más relevantes se muestran a continuación:

Sensibilidad	2cpm por kBq/m <sup>3</sup>
Rango de medida	0...2 MBq/m <sup>3</sup> (error ± 5% dentro de todo el rango)
Condiciones de operación	-10...40 °C, 0...100% rH sin condensación
Sensor temperatura	-20...+80 °C
Sensor de humedad	0...100% rH

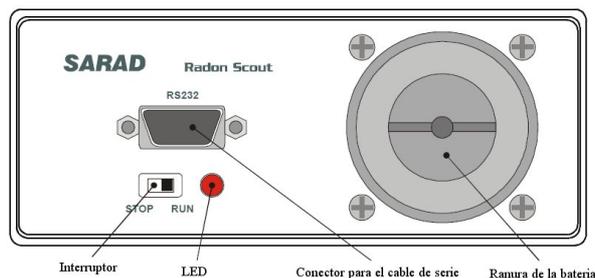


Figura 14. Esquema del dispositivo Radon Scout.

### 2.2.3 Factor de transferencia

La concentración de radón que proporciona el dispositivo RTM 2100 viene dada en  $\text{Bq/m}^3$  puesto que es la concentración que se mide en el circuito de aire. Para obtener la concentración de radón en el agua expresada  $\text{Bq/l}$  se han utilizado los resultados obtenidos mediante la técnica de la espectrometría gamma. Caracterizando así el factor de transferencia  $f$  de los tubos, es decir, el factor que cuantifica como de buena o mala es la difusión a través de ellos.

Los valores de la concentración de radón obtenidos con la espectrometría gamma y con el dispositivo RTM 2100 se muestran en la siguiente tabla. Se indica la fecha correspondiente a la toma de datos.

Fecha	RTM ( $\text{MBq/m}^3$ )	Gamma ( $\text{Bq/l}$ )
16 Abril	3,62	766
22 Abril	3,22	566
30 abril	3,29	539
5 Julio	3,87	850
Laboratorio	0,2	67
Laboratorio	0,1	12

Tabla 3. Datos obtenidos experimentalmente con la espectrometría gamma y con el dispositivo RTM 2100 en la fecha que se indica. Los dos últimos valores corresponden a resultados obtenidos en el laboratorio.

Realizando un ajuste lineal de los resultados mostrados en la tabla anterior, se obtiene el factor de transferencia  $f$  de los tubos de silicona. El ajuste realizado se muestra en la figura 15 y el valor obtenido del factor de transferencia es por tanto:

$$C_{\text{Rn,agua}}(\text{gamma}) = f \cdot C_{\text{Rn}}(\text{RTM}) \Rightarrow f = (1,96 \pm 0,10)10^{-4} \frac{\text{Bq/l}}{\text{Bq/m}^3} \quad (19)$$

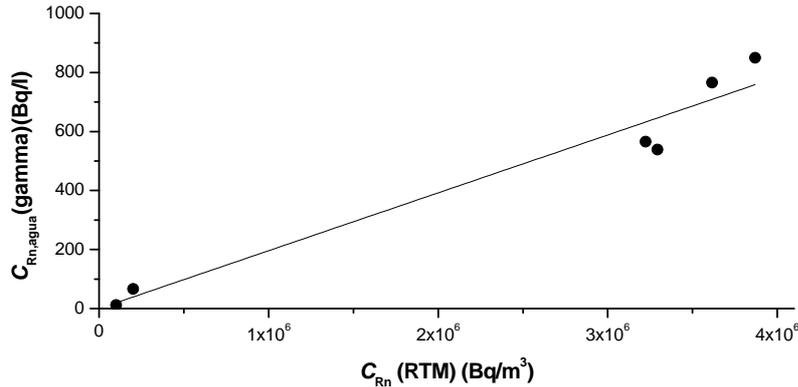


Figura 15. Representación de los datos experimentales de la concentración de radón en el agua obtenidos mediante la técnica de la espectrometría gamma  $C_{\text{Rn,agua}}(\text{gamma})$  frente a la concentración obtenida en el mismo instante con el dispositivo RTM  $C_{\text{Rn}}(\text{RTM})$ . El ajuste lineal se ha realizado según la ecuación 19. El coeficiente de determinación ajustado para este caso es  $R^2\text{-adj}=0,98$ .

### 2.3 Modelización del comportamiento del radón en el balneario

Debido al funcionamiento del balneario se observa un comportamiento periódico de la concentración de  $^{222}\text{Rn}$  en el agua en función del tiempo. Como ejemplo gráfico se ha tomado una serie de datos obtenidos experimentalmente de la concentración de radón en el agua medido con el dispositivo RTM 2100.

Como se observa en la figura 16, existen dos comportamientos claramente determinados. Uno es el aumento de la concentración hasta un máximo y el segundo es el decaimiento hasta el mínimo. Como se ha visto en el apartado 2.1, durante el funcionamiento del balneario se bombea agua del pozo exterior para abastecer a las instalaciones entre las seis de la madrugada y las doce del mediodía aproximadamente. Horario que coincide exactamente con la disminución de la concentración de radón observada en la figura mencionada.

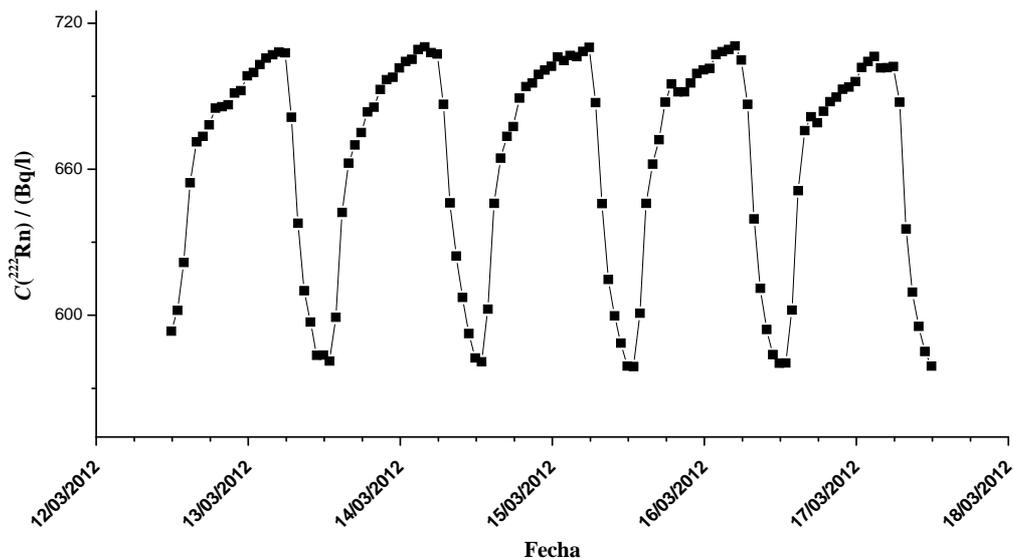


Figura 16. Datos experimentales de la concentración de radón  $C_{Rn,agua}$  en función del tiempo, obtenidos con el dispositivo RTM entre el 12 y el 17 de marzo del 2012.

A continuación se van a describir los modelos teóricos que intentan explicar estos dos comportamientos.

### 2.3.1 Modelo de compartimento cerrado (MCC)

Este modelo intenta explicar la variación en la concentración de radón  $C$  con el tiempo  $t$  cuando el balneario está parado. Es decir, cuando no se bombea agua del exterior. Esto ocurre normalmente entre las 12 del mediodía y las 6 de la mañana.

Como el agua se toma del pozo principal dentro del balneario y en principio no hay aporte de agua del exterior en este intervalo de tiempo. Se modeliza el problema suponiendo que se tiene un volumen  $V$  de agua con una concentración inicial de radón  $C(t=0)=C_0$ . Dentro de este volumen se encuentra una fuente de  $^{226}\text{Ra}$  que exhala  $^{222}\text{Rn}$  según una constante  $E$  a través de su superficie  $S$ . La disminución de radón vendrá dada por la desintegración a  $^{218}\text{Po}$  y por el paso de radón disuelto en el agua al aire. Por tanto la variación de la concentración de radón con el tiempo<sup>[23]</sup> se puede poner como:

$$\frac{dC}{dt} = \frac{ES}{V} - \lambda C \quad (20)$$

donde  $\lambda = \lambda(^{222}\text{Rn}) + \lambda_v$  ( $\text{h}^{-1}$ ).

$\lambda(^{222}\text{Rn}) \equiv$  constante de desintegración del  $^{222}\text{Rn}$ .

$\lambda_v \equiv$  constante que refleja la pérdida de radón en la interfase agua-aire por unidad de tiempo.

$ES/V \equiv$  tasa de emisión de radón ( $\text{Bq/l h}^{-1}$ ).

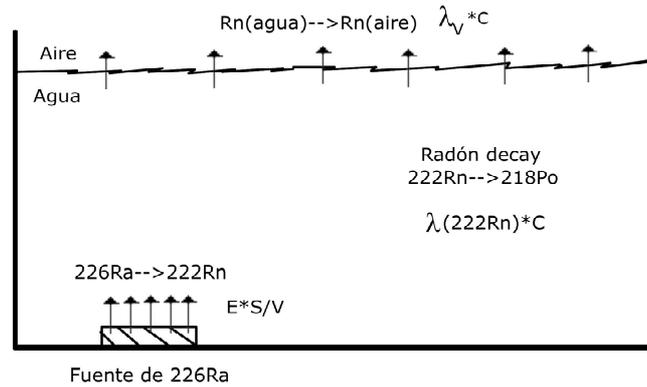


Figura 17. Representación simplificada de la dinámica de la concentración de radón descrita en el modelo de compartimento cerrado.

La resolución de la ecuación diferencial (20) (ver Apéndice I) denotando la tasa de emisión  $ES/V$  como  $\phi$  viene dada por:

$$C(t) = C_0 e^{-\lambda t} + \frac{\phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (21)$$

A partir de la Ec.20 y de la condición de máximo se puede obtener:

$$\frac{dC}{dt} = 0 \Rightarrow C_{\max} = \frac{\phi}{\lambda} \quad (22)$$

donde  $C_{\max}$  es la concentración máxima a la que tiende el radón según en modelo MCC.

### 2.3.2 Modelo de compartimento abierto (MCA)

Este modelo surge al intentar explicar el comportamiento de la concentración de radón en el agua cuando el balneario está en funcionamiento. Es decir, cuando se bombea agua del exterior con una concentración de radón distinta a la existente en el pozo principal (ver Tab.1). Suponemos las mismas condiciones del modelo anterior añadiendo un término de intercambio. Por tanto la variación de la concentración en el agua con el tiempo<sup>[23]</sup> viene dada por la ecuación:

$$\frac{dC}{dt} = \phi - \lambda C - \lambda_I (C - C^*) \quad (23)$$

donde  $\lambda_I$  es la constante que refleja el intercambio de volumen de agua por unidad de tiempo y  $C^*$  es la concentración de radón del pozo exterior que abastece a las instalaciones del balneario durante su funcionamiento.

La resolución de la ecuación 23 (ver apéndice I) es por tanto:

$$C(t) = C_1 e^{-\lambda^* t} + \frac{d}{\lambda^*} (1 - e^{-\lambda^* t}) \quad (24)$$

con  $d = \phi + \lambda_I C^*$  (Bq/l h<sup>-1</sup>).

$\lambda^* = \lambda + \lambda_I$  (h<sup>-1</sup>).

## 2.4 Estudio de correlaciones

En estadística, la correlación nos determina la relación o dependencia de dos o más variables sin tratar a priori de atribuir a una variable el efecto observado en otra. Como técnica descriptiva, el estudio de correlaciones es de gran interés porque determina si dos variables tienen algo en común, es decir, si están correlacionadas.

El coeficiente de correlación más usado frecuentemente es el coeficiente de correlación de Pearson, pensado para variables cuantitativas, es un índice que mide el grado de covariación entre distintas variables relacionadas linealmente. Puede haber variables fuertemente relacionadas pero no de forma lineal en cuyo caso no procedería la aplicación de la correlación de Pearson.

El coeficiente de correlación de Pearson viene denotado por  $r_{xy}$ , donde  $x$  e  $y$  son las variables. Puede oscilar entre +1 y -1, en el primer caso existe una relación perfecta positiva y en segundo una relación perfecta negativa. Sin embargo  $r_{xy}$  puede adoptar cualquier valor entre estos dos extremos. En el caso en el que  $r_{xy}=0$  se dice que no existe relación lineal entre las variables  $x$  e  $y$ .

La manera de obtener el coeficiente de correlación es a partir de la ecuación:

$$r_{xy} = \frac{\sum x_i y_i - n \bar{x} \cdot \bar{y}}{n s_x s_y} = \frac{n \sum x_i y_i - \sum x_i \sum y_i}{\sqrt{n \sum x_i^2 - (\sum x_i)^2} \sqrt{n \sum y_i^2 - (\sum y_i)^2}} \quad (25)$$

donde  $x_i$  e  $y_i$  son los valores de cada variable y  $n$  el número de valores.

Una vez obtenido el valor del coeficiente de correlación de Pearson, es interesante averiguar si realmente existe una correlación entre las variables o el resultado es puramente debido al azar. A efectos prácticos se calcula el número de desviaciones tipo que se encuentra el coeficiente obtenido del centro de la distribución, según la ecuación:

$$t = \frac{r_{xy} - 0}{\sqrt{\frac{1 - r_{xy}^2}{n - 2}}} \quad (26)$$

y se compara con un valor tabulado para un grado de significación  $\alpha$  y  $n-2$  grados de libertad. Si el valor obtenido de  $t$  es mayor que  $t(\alpha, n-2)$ , entonces consideraremos que las variables están relacionadas.

Una forma más exacta de determinar la validez del coeficiente de correlación es acudir a tablas interactivas que proporcionan un valor que indica el número de veces que nos estaremos equivocando si se consideran las variables correlacionadas. En el presente trabajo se ha utilizado el programa de análisis de datos *OriginPro8* que nos facilita el valor del coeficiente de correlación de Pearson, así como el valor de significación de dicho coeficiente que denotaremos por *sig.* .

Si la correlación posee un valor significativo, es decir, *sig.* próximo a cero, se puede utilizar la siguiente escala para interpretar el coeficiente (el signo de  $r_{xy}$  determinará si la correlación es positiva o negativa) :

$ r_{xy} $	Correlación
1	Perfecta
0,9 a 0,99	Muy alta
0,7 a 0,89	Alta
0,4 a 0,69	Moderada
0,2 a 0,39	Baja
0,01 a 0,19	Muy baja
0	Nula

Tabla 4. Escala de interpretación del coeficiente de correlación de Pearson.

## 2.5 Estimación de dosis

Para el cálculo de la dosis efectiva  $H$  debida a la inhalación de radón es necesario introducir magnitudes específicas relacionadas con la exposición a los descendientes del gas.

Se define energía potencial alfa como la energía alfa emitida por la desintegración de todos los descendientes desde el  $^{222}\text{Rn}$  hasta el  $^{210}\text{Pb}$ . Análogamente, la concentración de una mezcla de descendientes de radón en aire es la suma de la energía potencial alfa de todos los átomos de descendientes por unidad de volumen. Sigue siendo común utilizar la unidad WL (Working Level) tradicionalmente definida como la concentración en energía potencial alfa de una mezcla de descendientes que se encuentra en equilibrio con una concentración de radón de  $3700 \text{ Bq/m}^3$ .

Esta unidad tradicional corresponde a una combinación de descendientes de vida corta de radón en  $1 \text{ m}^3$  de aire que libera una energía potencial alfa de  $1,3 \cdot 10^8 \text{ MeV}$ , equivalente a  $2,08 \cdot 10^5 \text{ J}$ . La ecuación para obtener el WL es:

$$\text{WL} = \frac{C_{\text{Rn,aire}} (\text{Bq/m}^3) \cdot F}{3700} \quad (27)$$

donde  $C_{\text{Rn,aire}} (\text{Bq/m}^3)$  es la concentración de  $^{222}\text{Rn}$  en el aire expresada en  $\text{Bq/m}^3$  y  $F$  es el factor de equilibrio entre el radón y sus descendientes. Según la UNSCEAR para ambientes típicos de viviendas toma un valor promedio de  $0,4^{[22]}$ . Dado que la mayoría de sistemas de detección miden directamente la concentración de  $^{222}\text{Rn}$ , el conocimiento de este factor de equilibrio es fundamental para estimar las concentraciones

equivalentes de descendientes de vida corta, responsables directos de la irradiación del aparato respiratorio.

Directamente vinculada a la dosis recibida por inhalación de radón y descendientes está la magnitud exposición. Esta se define como el producto del periodo de duración de la inhalación de descendientes de radón por su correspondiente concentración. Relacionada con el WL, se usa la unidad WLM (Working Level Month), que es la exposición a 1 WL durante un periodo de trabajo de un mes (170 h):

$$\text{WLM} = \frac{\text{WL} \cdot t(\text{h/periodo})}{170} \quad (28)$$

donde  $t(\text{h/periodo})$  son las horas que tiene un periodo de tiempo determinado. En la exposición profesional, para el caso mensual se toma  $t = 170$  h/mes, y anual  $t = 2000$  h/año.

La tasa de dosis efectiva  $\dot{H}$  se obtiene a partir de las ecuaciones 27 y 28, teniendo en cuenta que el factor de conversión para el público y los trabajadores es de 4 y 5 mSv/WLM respectivamente. Estos factores son recomendados por la Comisión Internacional de Protección Radiológica (ICRP) procedentes de la recopilación de diferentes estudios epidemiológicos internacionales de exposición a radón en diferentes ambientes y riesgos asociados de cáncer de pulmón. Por tanto, la forma de estimar las dosis efectivas puede expresarse a través de las siguientes ecuaciones:

$$\dot{H}_{\text{público}} (\text{mSv/periodo}) = \frac{C_{\text{Rn,aire}} (\text{Bq/m}^3) \cdot F \cdot t(\text{h/periodo})}{3700 \cdot 170} \cdot 4 \quad (29)$$

$$\dot{H}_{\text{trabajadores}} (\text{mSv/periodo}) = \frac{C_{\text{Rn,aire}} (\text{Bq/m}^3) \cdot F \cdot t(\text{h/periodo})}{3700 \cdot 170} \cdot 5 \quad (30)$$

### 3. Resultados

Los resultados de la monitorización en continuo de la concentración de radón en el agua y en el aire del balneario en el periodo de marzo de 2012 a febrero de 2013 se muestran en la figura 18. Los dispositivos de medida en cada caso como se ha indicado en el apartado 2.2 son el RTM 2100 y el Radon Scout. Puntualmente se han obtenido valores de la concentración de radón en el agua mediante la técnica de la espectrometría gamma (ver apartado 2.2.3).

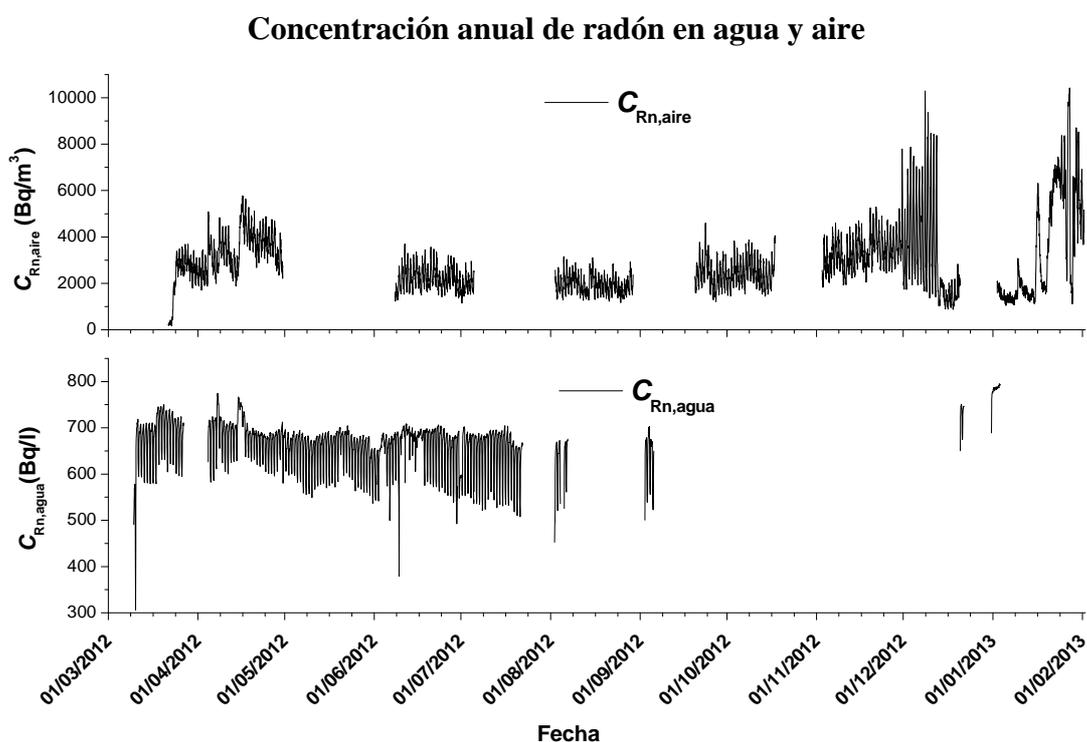


Figura 18. Representación gráfica de la concentración de radón en el agua ( $C_{Rn,agua}$ ) y en el aire ( $C_{Rn,aire}$ ) en el balneario Las Caldas de Besaya en función del tiempo en el periodo de marzo de 2012 a febrero de 2013 en intervalos de una hora. La incertidumbre de las medidas es del 5%.

El dispositivo RTM también proporciona datos del potencial redox, de la conductividad, del pH y de la temperatura en el agua, así como de la temperatura en el aire. En lo sucesivo se van a incluir estos parámetros y se van a analizar conjuntamente con el comportamiento de la concentración de radón.

### 3.1 Modelos MCC y MCA

Como se observa en la Fig.18, la concentración de radón en el agua sigue en general un comportamiento periódico. Esta periodicidad se intentará explicar siguiendo los modelos descritos en el apartado 2.3. A continuación se muestra un intervalo más detallado donde se observa dicho comportamiento.

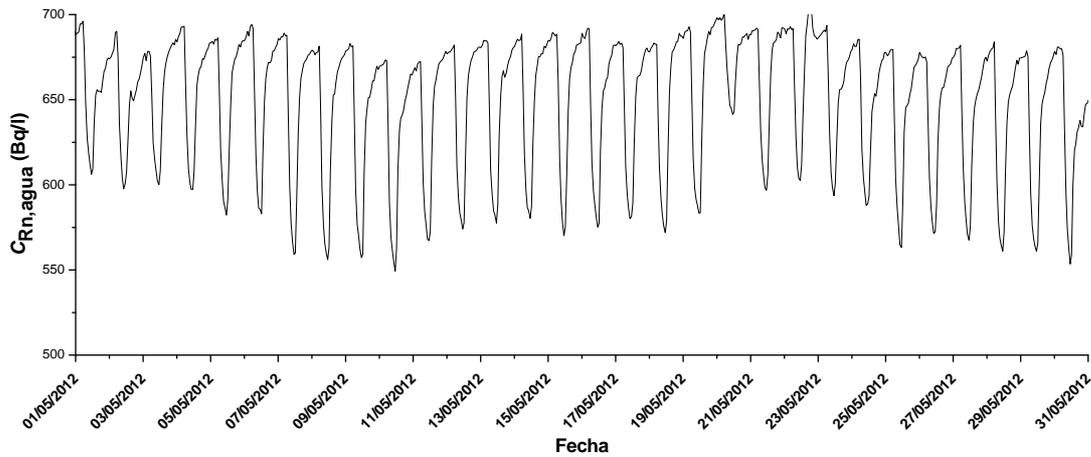


Figura 19. Datos experimentales de la concentración de radón en el agua en función del tiempo para el mes de mayo del 2012 medidos con el dispositivo RTM 2100.

Según el modelo de compartimento cerrado (MCC) (ver apartado 2.3.1) la concentración de radón en el agua en función del tiempo viene dada por la ecuación 21:

$$C(t) = C_0 e^{-\lambda t} + \frac{\phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t})$$

donde  $C_0 \equiv$  concentración inicial.

$$\lambda = \lambda(^{222}\text{Rn}) + \lambda_v .$$

$\lambda(^{222}\text{Rn}) \equiv$  constante de desintegración del  $^{222}\text{Rn}$ .

$\lambda_v \equiv$  constante que refleja la pérdida de Rn en la interfase agua-aire por unidad de tiempo.

$\phi \equiv$  tasa de emisión de radón.

En la figura 20 se muestra el ajuste realizado según la Ec.21 a los datos experimentales, cuando la concentración de radón sigue el comportamiento descrito en

el modelo MCC. Los intervalos de tiempo en los que se ha realizado este tipo de ajuste son seis, uno por cada mes entre marzo y agosto. Los resultados de los parámetros obtenidos se muestran en la tabla 5.

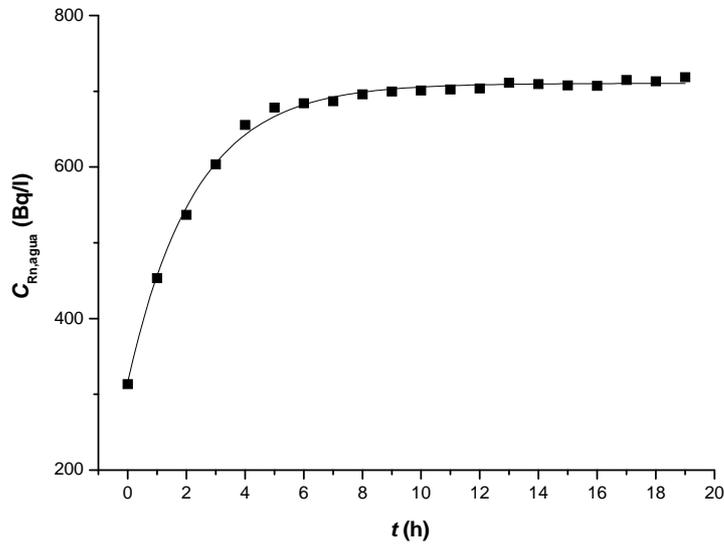


Figura 20. Ajuste realizado según el modelo MCC a los datos experimentales obtenidos el 10 y 11 de marzo entre las 10:50 y las 6:50.

Fecha	$C_0$ (Bq/l)	$\phi$ (Bq/l h <sup>-1</sup> )	$\lambda$ (h <sup>-1</sup> )	R <sup>2</sup> -adj
10-11 marzo 10:50 a 6:50	316	312 ± 7	0,44 ± 0,01	0,997
25-26 abril 11:03 a 5:03	601	170 ± 10	0,24 ± 0,02	0,969
13-14 mayo 11:12 a 5:12	557	270 ± 30	0,40 ± 0,04	0,943
19-20 junio 11:12 a 5:12	585	280 ± 30	0,40 ± 0,04	0,963
7-8 julio 11:25 a 5:25	534	230 ± 20	0,33 ± 0,03	0,965
2-3 agosto 12:21 a 4:21	533	320 ± 30	0,48 ± 0,04	0,971

Tabla 5. Resultados de los parámetros que caracterizan la ecuación dada por el modelo MCC obtenidos mediante el ajuste de los datos experimentales en las fechas que se indican. En dicho ajuste, la concentración inicial  $C_0$  se ha tomado como parámetro fijo, la incertidumbre asociada a este valor es del 5%. Se indica el valor del coeficiente de determinación ajustado R<sup>2</sup>-adj en cada caso.

En el caso del modelo de compartimento abierto (MCA), el comportamiento que se intenta explicar es la disminución de la concentración de radón cuando a las condiciones del modelo MCC se le introduce un caudal de agua adicional con una concentración de radón inferior. La ecuación que describe este modelo es la Ec.24:

$$C(t) = C_1 e^{-\lambda^* t} + \frac{d}{\lambda^*} (1 - e^{-\lambda^* t}) \quad \text{con } d = \phi + \lambda_r C^* \quad // \quad \lambda^* = \lambda + \lambda_r$$

Las series temporales se han tomado a continuación de las tomadas para el modelo MCC como se muestra en la tabla 6.

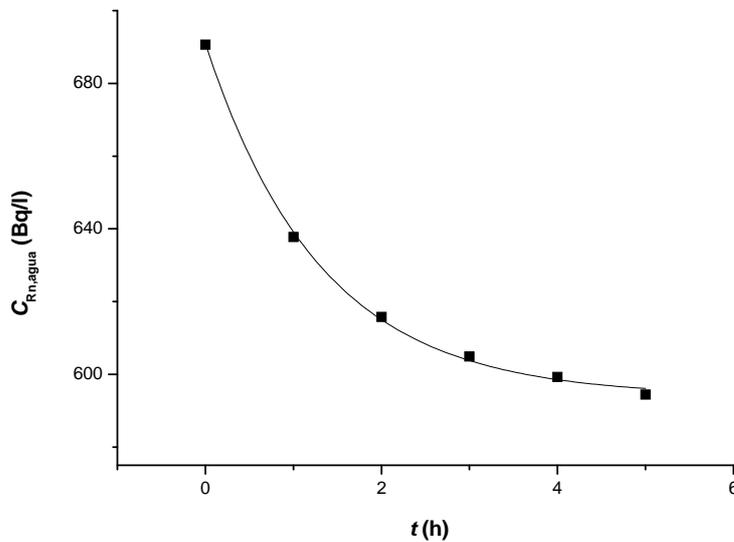


Figura 21. Ajuste realizado según el modelo MCA a los datos experimentales obtenidos el 11 de marzo entre las 6:50 y las 11:50.

Fecha	$C_1$ (Bq/l)	$d$ (Bq/l h <sup>-1</sup> )	$\lambda^*$ (h <sup>-1</sup> )	R <sup>2</sup> -adj
11 marzo 6:50-11:50	691	450 ± 20	0,76 ± 0,03	0,999
26 abril 6:03-10:03	660	310 ± 20	0,52 ± 0,03	0,998
14 mayo 5:12-10:12	657	420 ± 30	0,72 ± 0,05	0,998
20 junio 6:12-11:12	650	470 ± 30	0,80 ± 0,05	0,997
8 Julio 6:25-10:25	619	370 ± 50	0,70 ± 0,09	0,999
3 agosto 5:21-11:21	703	420 ± 20	0,67 ± 0,04	0,961

Tabla 6. Resultados de los parámetros que caracterizan la ecuación dada por el modelo MCA obtenidos mediante el ajuste de los datos experimentales en las fechas que se indican. En dicho ajuste, la concentración inicial  $C_1$  se ha tomado como parámetro fijo, la incertidumbre asociada a este valor es del 5%. Se indica el valor del coeficiente de determinación ajustado R<sup>2</sup>-adj en cada caso.

A partir de los parámetros de ajuste obtenidos en los modelos MCC y MCA mostrados en las tablas 5 y 6 respectivamente, se han calculado los valores de las constantes  $\lambda_v$  y  $\lambda_l$ , así como la concentración de radón del pozo exterior  $C^*$ .

Serie	$\lambda_v$ (h <sup>-1</sup> )	$\lambda_l$ (h <sup>-1</sup> )	$C^*$ (Bq/l)
Marzo	0,43 ± 0,01	0,32 ± 0,03	430 ± 80
Abril	0,23 ± 0,02	0,28 ± 0,04	500 ± 100
Mayo	0,39 ± 0,04	0,32 ± 0,06	470 ± 160
Junio	0,39 ± 0,04	0,40 ± 0,06	480 ± 130
Julio	0,32 ± 0,03	0,37 ± 0,09	380 ± 170
Agosto	0,47 ± 0,04	0,19 ± 0,06	500 ± 200

Tabla 7. Parámetros  $\lambda_v$ ,  $\lambda_l$  y  $C^*$  obtenidos a partir de las ecuaciones 21 y 24 y de los resultados de los ajustes mostrados en las tablas 5 y 6. Los errores asociados a cada dato se han obtenido mediante la propagación de errores (ver apéndice II).

### 3.2 Anomalías en la concentración de radón

En la figura 22 se muestran los resultados de la concentración de radón en el agua y de los parámetros adicionales medidos durante el mes de abril con el dispositivo RTM 2100. Se observa el comportamiento periódico descrito por los modelos MCC y MCA analizados en el apartado 3.1 y dos pequeñas anomalías. La primera el día 8 de abril y la segunda del 14 al 17 de abril aproximadamente (zona sombreada). En estos intervalos de tiempo la concentración de radón aumenta por encima de los valores normalmente esperados. Adicionalmente la conductividad y temperatura del agua disminuyen respectivamente 0,2 mS/cm y 0,5°C el 8 de abril y 1 mS/cm y 1,5 °C entre los días 14 y 17. Los parámetros potencial redox, pH y temperatura del aire aparentemente no sufren ninguna anomalía durante esos periodos.

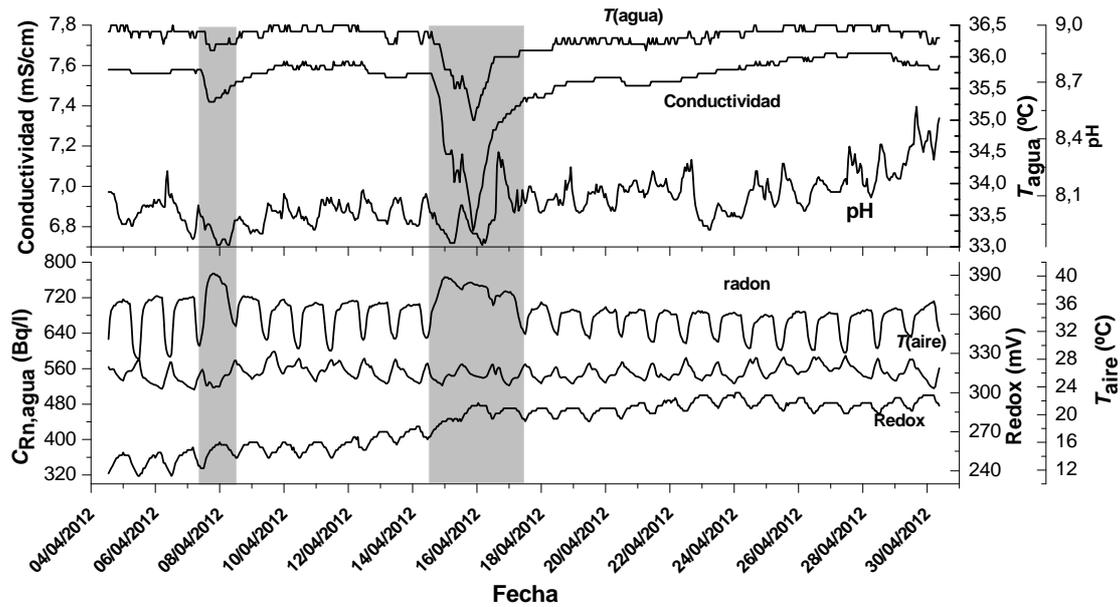


Figura 22. Resultados experimentales de la concentración de radón en el agua, la conductividad, el potencial redox, el pH, y las temperaturas de agua y aire para el mes de abril medidos con el dispositivo RTM 2100.

Adicionalmente en la Fig.23 se muestra conjuntamente el comportamiento del radón en agua y aire durante el mes de abril donde se observaron las anomalías mencionadas en la Fig.22.

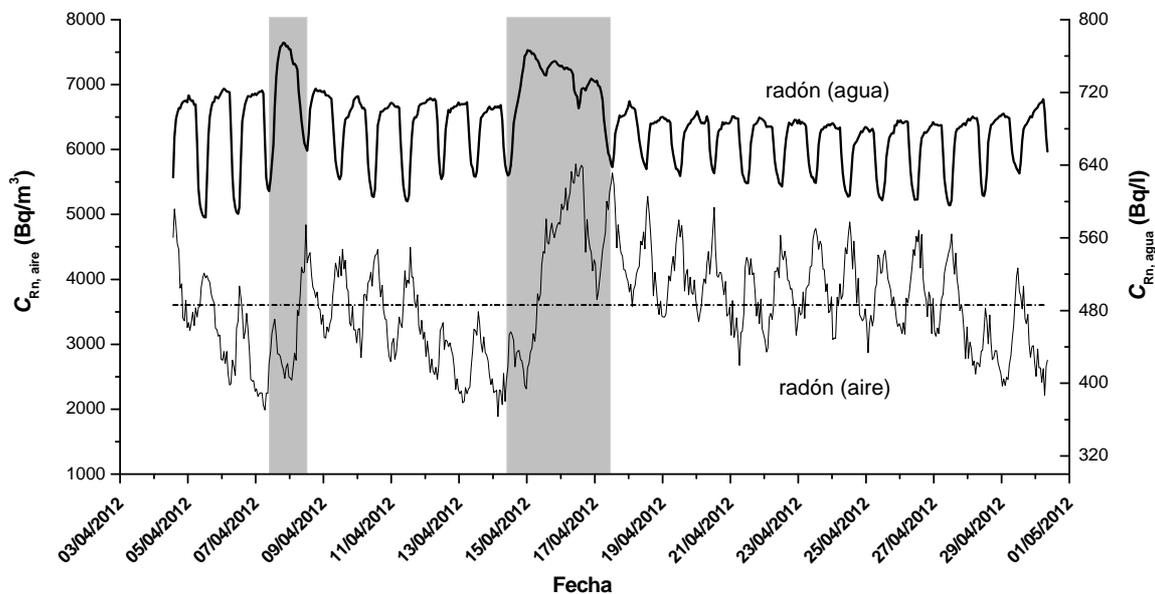


Figura 23. Resultados experimentales de la concentración de radón en el agua y en el aire medidos con los dispositivos RTM 2100 y Radon Scout respectivamente durante el mes de abril. La línea de puntos indica  $3606 \text{ Bq/m}^3$ , valor medio de la concentración en el aire durante este mes.

El balneario durante los periodos en los que se observan dichas anomalías ha permanecido cerrado, es decir, no se ha bombeado agua del pozo exterior. Como no se ha introducido agua con menor concentración de radón del exterior, la concentración del pozo principal sigue aumentando hasta alcanzar un máximo que corresponde con la situación de equilibrio entre producción de radón y pérdidas debidas al intercambio con el aire y a la desintegración del propio radón. Otro de los resultados a los que se puede llegar es que la temperatura del agua en el pozo exterior es ligeramente superior a la del pozo principal, así como su conductividad. Es decir, tiene mayor número de iones en disolución.

Respecto a la concentración de radón en el aire cuyos datos están representados en la Fig.23, se observa que sigue un comportamiento aparentemente periódico de máximos y mínimos consecutivos. La concentración disminuye por debajo de la media en los periodos previos a la parada del balneario. Esto puede ser debido a la baja actividad antes del cierre del balneario que provoca que disminuya el movimiento de agua y por tanto la exhalación de radón al aire. Sin embargo, en el intervalo de parada pese a que se dan las condiciones de baja actividad de trabajo, la concentración en el aire aumenta. Una hipótesis que explique este comportamiento puede ser que hayan disminuido las condiciones de ventilación en el edificio provocando el aumento por encima de la media.

A continuación se va a analizar dos series temporales correspondientes a anomalías en la concentración de radón en el agua y en el aire:

#### - Agua

Otra de las anomalías claramente observables de la concentración de radón en el agua representadas en la Fig.18, se encuentra en el periodo del 9 al 18 de junio. En la figura 24 se representa dicho intervalo. Al principio y final de esta serie se reconoce el comportamiento descrito por los modelos teóricos del apartado 3.1. En la concentración de radón se observan eventualmente variaciones superiores al 40%. La conductividad y temperatura del agua varían hasta un 90 y 15 % respectivamente coincidiendo con las variaciones bruscas de radón. Los demás parámetros estudiados permanecen prácticamente constantes con variaciones máximas de un 12% en la temperatura del aire, un 8% en el caso del potencial redox y un 4% en el pH, no coincidiendo con las anomalías observadas.

El resultado de las anomalías representadas en la Fig.24 se pueden resumir como: Disminución significativa de la concentración de radón en el agua, de la

conductividad y de la temperatura del agua. Este hecho podría estar relacionado con que el agua provenga de filtraciones de la lluvia o del río, puesto que esta agua tiene muy poco contenido en radón, así como de iones en disolución, y su temperatura es inferior al agua termal del balneario.

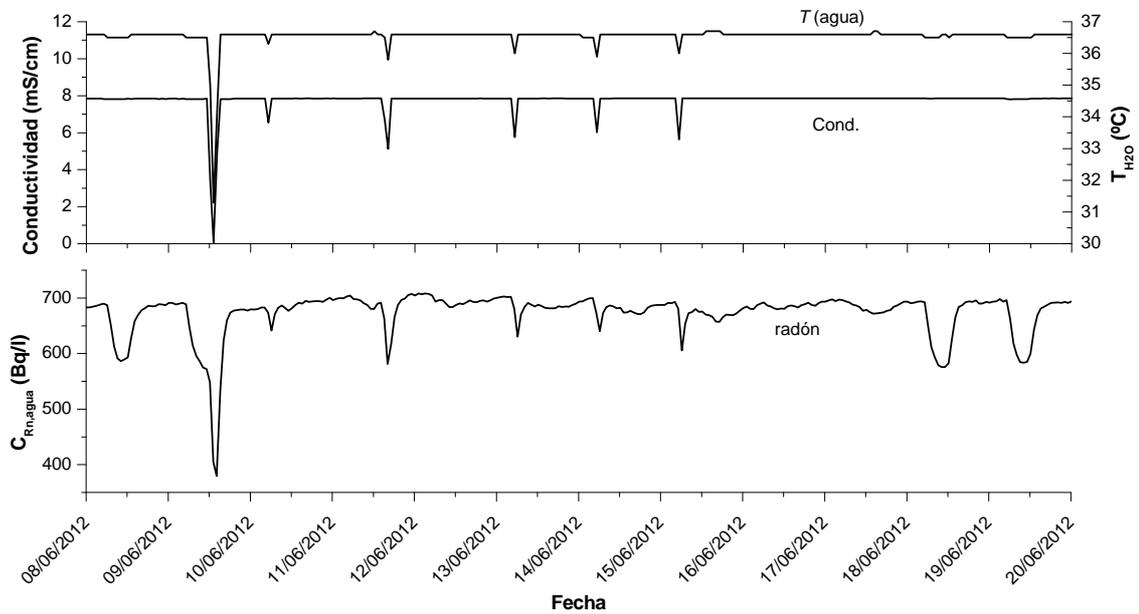


Figura 24. Resultados experimentales de la concentración de radón en el agua, la conductividad y la temperatura del agua en el periodo del 8 al 20 de junio, medidos con el dispositivo RTM 2100.

#### - Aire

El comportamiento del radón en el aire medido por el dispositivo Radon Scout a partir del mes de diciembre se muestra en la figura 25. Durante este mes han ocurrido varios eventos que podrían explicar las variaciones de radón en el aire. A partir del día 12 de diciembre ha finalizado la temporada anual del balneario y ha sido cerrado al público. El 19 de enero de 2013 se produjo un descenso brusco de la presión atmosférica en la península ibérica que ha desencadenado fuertes lluvias e inundaciones de unos 30 cm de agua dentro de la sala de termas del balneario. Para estos casos excepcionales en los que se inunda el balneario, se dispone de bombas de achique que extraen el agua al exterior. Durante el mes de enero y febrero de 2013 se han realizado diversas obras y reformas dentro de la instalación que pueden afectar de alguna manera a la concentración de radón en el aire.

Una vez que se ha cerrado el balneario el 12 de diciembre se observa una caída brusca en la concentración de radón en el aire. Esto puede ser debido a la disminución de movimiento del agua y por tanto de exhalación de radón al aire. A pesar de los pocos datos que se tienen de la concentración en el agua, se observa que durante ese periodo los niveles están por encima de la media, del orden de 800 Bq/l. A partir del 19 de enero, periodo en el cual se produce la inundación, se observa un aumento brusco de la concentración en el aire, hasta 7000 Bq/m<sup>3</sup>. Una posible explicación puede ser la gran superficie que adquiere el agua para exhalar radón junto con altos movimientos de la misma. Respecto a la etapa final de enero, destacar que hay variaciones que rozan los máximos y mínimos anuales que a priori no se pueden asociar a ningún evento conocido.

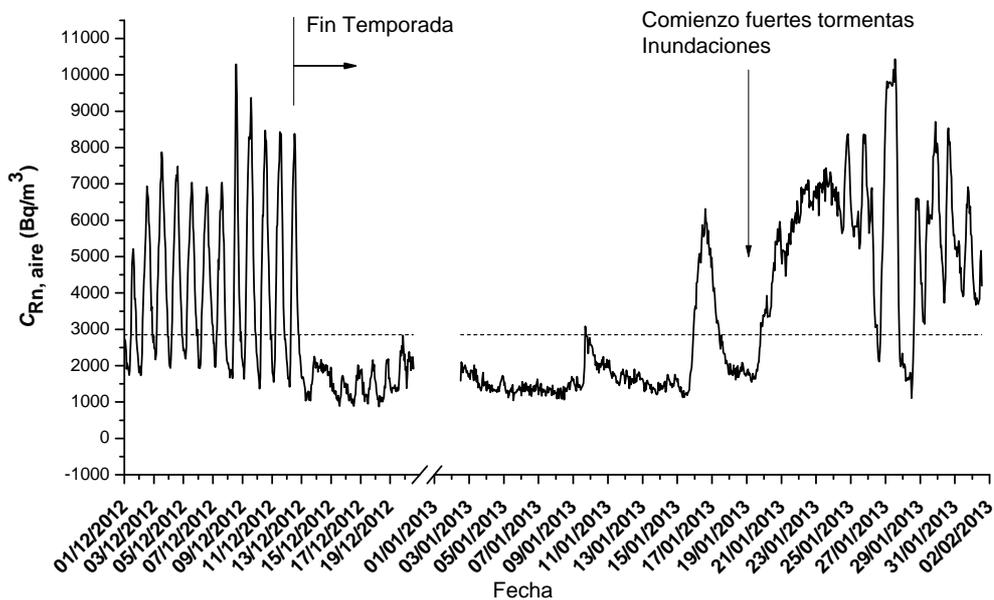


Figura 25. Resultados experimentales de la concentración de radón en el aire medida con el dispositivo Radon Scout durante los meses de diciembre de 2012 y enero de 2013. La línea de puntos indica 2850 Bq/m<sup>3</sup>, valor medio anual de la concentración en el aire.

### 3.3 Correlaciones con parámetros físico-químicos

En el apartado 2.4 se ha expuesto la teoría de correlaciones a partir del coeficiente de correlación lineal de Pearson. El estudio de correlaciones se ha realizado cuantitativamente con el programa *OriginPro8*. Este programa proporciona el coeficiente de correlación de Pearson  $r_{xy}$ , donde  $x$  e  $y$  son las variables a correlacionar. El valor de significación *sig.*, que indica el número de veces que nos estaremos

equivocando si consideramos las variables correlacionadas. Y la representación grafica de una variable frente a la otra.

El estudio de correlaciones se ha realizado entre la concentración de radón en el agua y los parámetros medidos con el dispositivo RTM 2100, de la concentración de radón en el aire frente a la temperatura ambiente del balneario medidos con el dispositivo Radon Scout, y por ultimo de la concentración de radón en el agua frente a la del aire.

Debido a la gran cantidad de datos de los que se dispone y a las anomalías que se encuentran en la serie anual, se ha realizado el estudio de correlaciones mes a mes, tomando en cada caso los resultados más significativos. En las figuras 26 y 27 se muestran las representaciones gráficas de las correlaciones significativas encontradas.

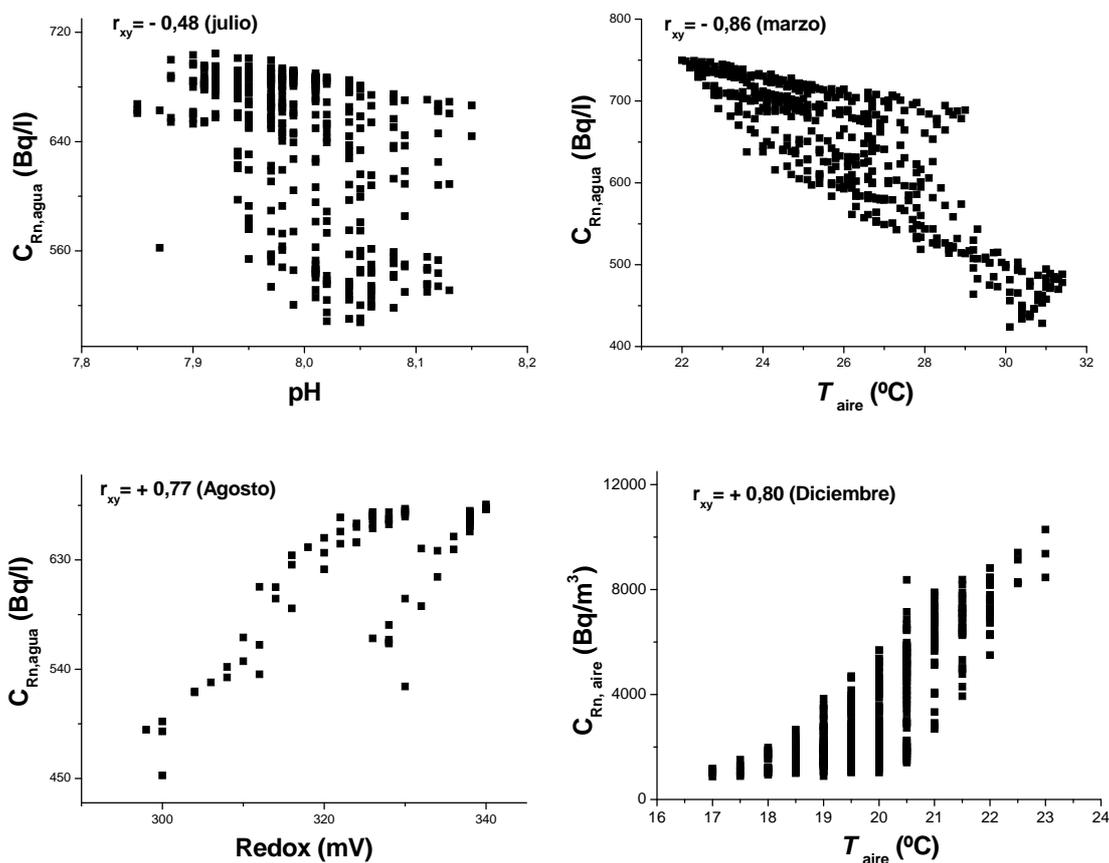


Figura 26. Concentración de radón en el agua ( $C_{Rn, agua}$ ) frente al pH, temperatura del aire y potencial redox. En la esquina inferior derecha se representa la concentración de radón en el aire ( $C_{Rn, aire}$ ) frente a la temperatura del aire. Se muestra en cada caso el coeficiente de correlación y el mes al cual pertenecen los datos experimentales. En todos los casos el valor de sig. ha sido 0.

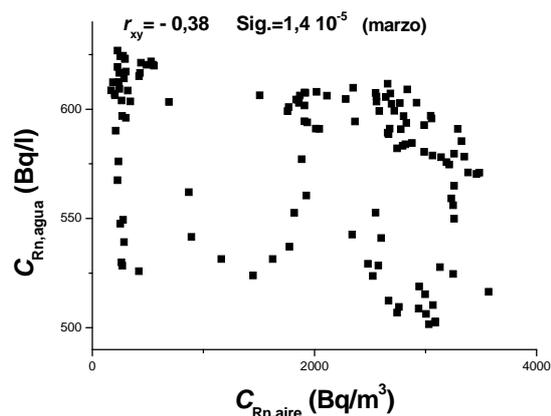


Figura 27. Representación gráfica de la concentración de radón en el agua frente a la del aire medida durante el mes de marzo. El coeficiente de correlación de Pearson obtenido ha sido  $r_{xy} = -0,38$ , con un valor de  $\text{sig.} = 1,4 \cdot 10^{-5}$ .

### 3.4 Estimación de dosis

La estimación de dosis se ha realizado a partir de las ecuaciones 29 y 30 para pacientes y trabajadores de la instalación respectivamente. Como valor de la concentración de radón en el aire se ha tomado la media anual medida por el dispositivo Radon Scout, que proporciona un valor de  $2850 \text{ Bq/m}^3$ . El cálculo de la dosis recibida por los trabajadores se ha realizado mensual y anualmente, tomando un total de 170 y 2000 horas trabajadas de media en cada caso. Para el cálculo de la dosis a pacientes se ha supuesto que la permanencia en las instalaciones es de 2 horas diarias para la estimación de la dosis semanal. Por tanto la dosis efectiva recibida por pacientes y trabajadores en los periodos mencionados es:

	Periodo	$H$ (mSv)
Trabajadores	Anual	18,1
	Mensual	1,5
Pacientes	Semanal	0,1

Tabla 8. Dosis recibidas por trabajadores y pacientes en los periodos indicados debidos a una concentración media de radón de  $2850 \text{ Bq/m}^3$ .

## 4. Conclusiones

Como se observa en la Fig.18, los niveles de radón tanto en el agua como en el aire del balneario Las Caldas de Besaya son excepcionalmente altos, con una media en los meses estudiados de 559 Bq/l y 2850 Bq/m<sup>3</sup> respectivamente. Uno de los niveles más altos de España según el artículo de J. Soto et al. realizado en 54 balnearios en 1994. Muy superior a 40 Bq/m<sup>3</sup>, nivel medio de radón en el aire en las viviendas españolas<sup>[18]</sup>. En ambos casos los niveles medidos son consecuentes con los del artículo anteriormente mencionado.

Se ha realizado un desarrollo adicional del sistema de medida de radón en agua relacionado con los tubos de difusión agua/aire. Se ha cambiado el material y la longitud total de tubo sumergido en agua con el fin de incrementar la eficacia de transferencia de radón por difusión, manteniendo la misma hermeticidad al paso de agua. La determinación de radón en agua por espectrometría gamma, que se ha tomado como referencia, lleva implantada mucho tiempo en el Laboratorio de Radiactividad Ambiental (LARUC) de la Universidad de Cantabria, siendo periódicamente contrastada en ejercicios de comparación interlaboratorios.

### 4.1 Modelos teóricos

Como se muestra en las figuras 20 y 21, los modelos teóricos propuestos en el apartado 2.3 parecen adecuados para explicar el comportamiento periódico de la concentración de radón en el agua. Las ecuaciones dadas por estos modelos se ajustan a los datos experimentales con bastante precisión. En todos los casos el coeficiente de determinación ajustado R<sup>2</sup>-adj no es inferior a 0,94.

A partir del modelo de compartimento cerrado MCC se puede concluir que las pérdidas de radón en el agua están controladas fundamentalmente por la exhalación al aire a través de la superficie del agua ( $\lambda \approx \lambda_v$ ). Lo que a la vista de las altas concentraciones de radón del agua le convierten en el foco principal de radón en el balneario. La tasa de emisión  $\phi$  obtenida con este modelo se encuentra en torno a 260 Bq/l h<sup>-1</sup>, valor que se podría tomar como referencia para caracterizar el pozo. Sin embargo, se encuentran variaciones del 50 % entre los valores obtenidos. Lo que puede inducir a pensar que la tasa de emisión el pozo no es constante a lo largo del año, pudiendo estar controlada por otra serie de factores tales como el caudal de agua que sale el manantial que abastece el pozo principal.

Los resultados que se han obtenido del modelo de compartimento abierto MCA proporcionan una aproximación de la concentración del pozo exterior  $C^*$  que surte a la instalaciones. La mayoría de los valores obtenidos son consecuentes con el valor de  $560 \pm 80$  Bq/l que se muestra en la tabla 1 sacado de las referencias [10] y [11]. Este modelo también ha permitido caracterizar el intercambio de volumen por unidad de tiempo con la constante  $\lambda_7$  entre al agua del pozo principal y el exterior.

En ambos modelos el valor de la concentración a tiempo cero, se ha tomado constante puesto que es un valor conocido a priori. Esto se ha realizado con el fin de disminuir el error de los parámetros que proporciona el programa de ajuste, acción que parece bastante adecuada.

## 4.2 Radón frente a parámetros físico-químicos

Como se ha analizado en el apartado 4.1, la concentración de radón en el agua está básicamente controlada por el funcionamiento del balneario. Sin embargo, los parámetros adicionales medidos, fundamentalmente la conductividad y la temperatura del agua, varían claramente cuando se encuentran anomalías a los modelos teóricos propuestos. Estos dos parámetros pueden indicar el origen del agua, el agua proveniente del río o de la lluvia tiene una conductividad y temperatura muy baja respecto al agua termal, lo que ocasiona descensos de estos dos parámetros (ver Fig.24). En el caso representado en la figura 22, la conductividad y temperatura disminuyen mucho menos y dadas las condiciones que se dan al cerrar el balneario se puede concluir que la temperatura y conductividad del poco principal es inferior a la del pozo exterior. La causa de que el pozo exterior tenga menor contenido en radón que el pozo principal se puede explicar a partir de la solubilidad del radón que disminuye con la temperatura, suponiendo que el contenido de radio de las rocas es similar en ambos pozos.

Analizando las correlaciones de la concentración de radón en el agua con los demás parámetros medidos, se ha encontrado que el pH y el potencial redox tienen una moderada y alta correlación directa respectivamente. Esto puede ser debido a que estas condiciones son idóneas para que el radio en disolución ( $Ra^{2+}$ ) sea absorbido por la superficie del acuífero formando así una excelente fuente de radón. La temperatura del aire tiene una alta correlación inversa con la concentración de radón en el agua, pudiendo estar controlada por el propio funcionamiento del balneario ya que cuando se inyecta agua del exterior con una concentración inferior de radón, la temperatura aumenta. Con la temperatura del agua se esperaría una correlación inversa, pero como las variaciones de la misma son del orden de la incertidumbre del termómetro, no se han encontrado resultados significativos.

Respecto al comportamiento del radón en el aire, este depende de muchos factores que no se han controlado tales como la ventilación, el número de pacientes que usan las instalaciones, la presión atmosférica, etc. Una de las conclusiones que ya se han mencionado es que la fuente de radón en el aire es el agua. Existe una alta correlación directa entre el radón en el aire y la temperatura ambiente. Como en el caso anterior esta correlación puede ser debida al funcionamiento del balneario siendo también coincidente con el día y la noche.

Se observa una baja correlación inversa entre las concentraciones de radón en el agua y aire en el mes de marzo, que se hacen insignificantes en los demás meses, lo que no conduce a un resultado fiable. Esta anticorrelación puede venir explicada por la disminución superficial del radón en el agua y el consiguiente aumento en el aire.

### 4.3 Legislación y dosis

La instrucción IS-33 establece como nivel de referencia  $600 \text{ Bq/m}^3$  para lugares de trabajo tales como una instalación termal, caso que nos ocupa. Los niveles que se tienen en el balneario Las Caldas de Besaya superan con creces este nivel, estableciéndose por encima de  $1000 \text{ Bq/m}^3$ , lo que conllevaría aplicar un nivel alto de control. Requiriéndose aplicar con carácter general los principios de protección radiológica operacional establecidos en el Título IV del RPSRI<sup>[20]</sup>. En la práctica esta aplicación se llevará a cabo de forma gradual considerando el nivel de exposición, el número de trabajadores afectados y las alternativas de protección existentes. Se deberá estudiar la concentración de radón en el aire en los lugares donde se encuentran habitualmente los trabajadores, con el fin de conocer con mayor precisión la dosis característica de cada puesto de trabajo. El conocimiento de la dinámica de la concentración de radón en el aire interior del balneario permitiría, adicionalmente, la aplicación de sistemas de protección radiológica basados en modificaciones de horarios de trabajo.

En la tabla 8 se muestra la estimación de la dosis recibida por los trabajadores y pacientes, anual y mensualmente para los primeros y semanal para los segundos. La dosis anual que reciben los trabajadores supera 7,5 veces la dosis media mundial anual asociada a la radiación natural, donde el radón supone el 50% de la misma. En un mes un trabajador de esta instalación termal según esto, ya recibiría la dosis media anual asociada al radón. Para el caso de los pacientes la dosis recibida en una semana sería la equivalente a realizarse una radiografía de torax, suponiendo una contribución a la dosis anual de escasa relevancia.

## 5. Agradecimientos

Quiero expresar mi agradecimiento al director de este proyecto, Carlos Sainz, por su gran ayuda, dedicación, y por acercarme un poco más al ámbito de la investigación y la física experimental. A Luís S. Quindós por sus consejos y conocimientos. Y por ultimo a la dirección y personal del balneario Las Caldas de Besaya por su disponibilidad de acceso a la instalación tanto para emplazar los dispositivos como para la descarga de datos.

## 6. Bibliografía

- [1] Roba C. A., Nita D., Cosma C., Codrea V., Olah S., “Correlations between radium and radón ocurente and hydrogeochemical features for varius geothermal aquifers in Northwestern Romania”, (2012), *Geothermics* 42.
- [2] Rodenas C., Gómez J., Soto J., Maraver F., “Natural radioactivity of spring water used as spas in Spain”, (2008), *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, Vol. 277, No.3.
- [3] Quindós L. S. “Radón, Un gas radiactivo de origen natural en su casa”, (1995), CSN.
- [4] Salih I., Mattias Bäckströmb, Karlssonb S., Lunda E., Pettersson H.B.L., “Impact of fluoride and other aquatic parameters on radon concentration in natural waters”, (2004), *Applied Radiation and Isotopes* 60, p 99-104.
- [5] Hunyadi, I., Csige, J., Hakl, E., Baradacs, J., Dezso, Z., “Temperature dependence of the calibration factor of radon and radium determination in water samples by SSNTD”. (1999). *Radiation Measurements* 31, 301.
- [6] Vinson D. S., Vengosh A., Hirschfeld D., Dwyer G. S., “Relationships between radium and radon occurrence and hydrochemistry in fresh groundwater from fractured crystalline rocks, North Carolina (USA)”. (2009). *Chemical Geology* 260. p 159–171.
- [7] Toutain J.P., Baubron J.C., "Gas geochemistry and seismotectonics: a review".(1999). *Tectonophysics* 304, p 1–27.

- [8] Krane K. S., "Introductory nuclear physics" (1988). Ed. John Wiley and sons, p 246-261.
- [9] Gran Enciclopedia de Cantabria (1985), Ed. Cantabria S.A., Tomo I, p 50-51.
- [10] Soto J., Delgado M. T., Fernandez P., Gómez J. Quindós L. S., "Niveles de  $^{222}\text{Rn}$  en el balneario Las Caldas de Besaya (Cantabria)". (1991). Rec. San. Sig. Pub. p 71-75.
- [11] Soto J., Fernandez P., Quindós L. S., Gómez J., "Radioactivity in Spanish spas" (1995), *The Science of the Total Environment* 162, p 187-192.
- [12] Sarad Gmbh Environmental Instruments "RTM 2100 Radon/Thoron monitor. Operation Manual".
- [13] Sarad Gmbh Environmental Instruments "User Manual Radon Scout" (2005).
- [14] Richard B. Firestone, "Table of isotopes" (1996) Eighth edition, Wiley-Interscience.
- [15] UNSCEAR. "Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation to the General Assembly" (2000), p 3.
- [16] CSN Consejo de Seguridad Nuclear, "Dosis de radiación". Madrid (2010).
- [17] Surbeck H. "Dissolved gases as natural tracers in karst hydrogeology; radon and beyond". (2007). University of Neuchatel, Switzerland.
- [18] Quindós L. S., Soto J., Fernández P.L.). "Medida de la concentración de radón en el interior de viviendas españolas". (1991 *Revista Española de Física*, 5 (1)).
- [19] Instrucción IS-33, de 21 de diciembre de 2011, del Consejo de Seguridad Nuclear, sobre criterios radiológicos para la protección frente a la exposición a la radiación natural .BOE num.22, de 26 enero 2012. p 6833-6838.
- [20] Reglamento sobre protección sanitaria contra radiaciones ionizantes. Título IV. "Principios fundamentales de protección operacional de los trabajadores expuestos, personas en formación y estudiantes para la ejecución de las prácticas". BOE num. 178, de 26 julio 2001. p 27288-27292.
- [21] World Health Organization(WHO). "WHO handbook on indoor radon: a public health perspective". (2009).

- [22] UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation). "Annex E: Sources-to-Effects Assessment for Radon in Homes and Workplaces". (2006). United Nations, New York.
- [23] Kowalczk A. J., Froelich P. N., "Cave air ventilation and CO<sub>2</sub> outgassing by radon-222 modeling: How fast do caves breathe?". (2010). *Earth and Planetary Science Letters* 289, p 209–219.
- [24] Savoy L., Heinz Surbeck H., Daniel Hunkeler D., "Radon and CO<sub>2</sub> as natural tracers to investigate of karst aquifers". (2011). *Journal of Hydrology* 406, p 148–157.
- [25] Salih I., Pettersson H., Lund E., "Determination of <sup>222</sup>Rn and <sup>226</sup>Ra in water using a large volume ionisation chamber". (2000). *Journal of Environmental Radioactivity* 48, p 235-245.
- [26] Szabo Z., dePaul V. T., Fischer J. M., Kraemer T. F., Jacobsen E., "Occurrence and geochemistry of radium in water from principal drinking-water aquifer systems of the United States". (2012). *Applied Geochemistry* 27, p 729–752.
- [27] Robador A., Heredia N., Rodríguez L. R., Marquinez J., "Mapa geológico de Cantabria". Instituto Geológico y Minero de España.
- [28] Prasad G., Prasad Y., Gusain G. S., Ramola R. C., "Measurement of radon and thoron levels in soil, water and indoor atmosphere of Budhakedar in Garhwal Himalaya, India". (2008). *Radiation Measurements* 43, S375–S379.

## 7. Apéndice

### I. Resolución de la ecuación diferencial de los modelos MCC y MCA

Las ecuaciones diferenciales que aparecen en los modelos MCC y MCA tienen la forma:

$$\frac{dC}{dt} = a - b \cdot C \quad (31)$$

Se trata de una ecuación diferencial lineal de primer orden. Una de las formas de resolverla es utilizar el método de variación de constantes:

- Se resuelve la ecuación homogénea:

$$\frac{dC}{dt} = -b \cdot C \Rightarrow \frac{dC}{C} = -b \cdot dt \Rightarrow C_{\text{hom}} = qe^{-bt}; q \equiv \text{cte}$$

-Se sustituye el resultado en la ecuación inicial:

$$\frac{d}{dt}(qe^{-bt}) = a - b \cdot qe^{-bt} \Rightarrow \frac{dq}{dt}(e^{-bt}) - \cancel{bqe^{-bt}} = a - \cancel{b \cdot qe^{-bt}}$$

$$\frac{dq}{dt}(e^{-bt}) = a \Rightarrow dq = ae^{+bt} dt \Rightarrow \boxed{q = \frac{a}{b} e^{+bt} + q_2}$$

$$C = \left(\frac{a}{b} e^{+bt} + q_2\right) e^{-bt} = \frac{a}{b} + q_2 e^{-bt}$$

$$\text{Con la condición inicial : } C(t=0) = C_0 = \frac{a}{b} + q_2 \Rightarrow \boxed{q_2 = C_0 - \frac{a}{b}}$$

El resultado es por tanto:

$$C = \frac{a}{b} + (C_0 - \frac{a}{b})e^{-bt} \Rightarrow \boxed{C = C_0 e^{-bt} + \frac{a}{b}(1 - e^{-bt})}$$

## II. Propagación de errores

Para obtener el error asociado a una variable  $y$  que se obtiene indirectamente a partir de otras cuyo error es conocido, se puede aplicar propagación de errores. La ecuación general viene dada por:

$$\delta y = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left( \frac{\partial y}{\partial x_i} \right)^2 \delta x_i^2} \quad (32)$$

donde  $n$  es el número de variables denotadas por  $x_i$ ,  $\delta x_i$  es el error asociado a cada una de esas variables.

Los errores asociados a los parámetros  $\lambda_v$ ,  $\lambda_l$  y  $C^*$  que se muestran en la tabla 7, se han obtenido a partir de la propagación de errores descrita por la Ec.32, por tanto:

$$\delta \lambda_v = \sqrt{\left( \frac{\partial \lambda_v}{\partial \lambda} \right)^2 \delta \lambda^2 + \left( \frac{\partial \lambda_v}{\partial \lambda^{(222 \text{ Rn})}} \right)^2 \delta \lambda^{(222 \text{ Rn})^2} = \left( \frac{\partial \lambda_v}{\lambda} \right) \delta \lambda = \delta \lambda$$

$$\delta \lambda_l = \sqrt{\left( \frac{\partial \lambda_l}{\partial \lambda} \right)^2 \delta \lambda^2 + \left( \frac{\partial \lambda_l}{\partial \lambda^*} \right)^2 \delta \lambda^{*2} = \sqrt{\delta \lambda^2 + \delta \lambda^{*2}}$$

$$\delta C^* = \sqrt{\left( \frac{\partial C^*}{\partial d} \right)^2 \delta d^2 + \left( \frac{\partial C^*}{\partial \phi} \right)^2 \delta \phi^2 + \left( \frac{\partial C^*}{\partial \lambda_l} \right)^2 \delta \lambda_l^2} = \sqrt{\left( \frac{1}{\lambda_l} \right)^2 \delta d^2 + \left( \frac{-1}{\lambda_l} \right)^2 \delta \phi^2 + \left( \frac{\phi - d}{\lambda_l^2} \right)^2 \delta \lambda_l^2}$$