



*Facultad
de
Ciencias*

**PUESTA A PUNTO DE UN SISTEMA DE
MEDIDA DE RADÓN EN AGUA APLICADO
AL ESTUDIO DE ACUÍFEROS**
(Set up of a radon in water measurement
system applied to aquifers' study)

Trabajo de Fin de Grado
para acceder al

GRADO EN FISICA

Autor: Marta Fuente Lastra

Director: Carlos Sainz Fernández

Co-Director: Luis S. Quindós Poncela

Julio - 2015

Agradecimientos

Quiero dar las gracias al director de este trabajo Carlos Sainz por su implicación y ayuda, y especialmente al co-director Luis S. Quindós por sus ideas y por abrirme las puertas al Grupo Radón. Agradecer también a los técnicos de laboratorio por su disposición y ayuda a lo largo de estos meses, a Jose por toda su ayuda con la edición, y a los demás miembros del Grupo Radón por sus consejos y compañía.

Índice general

Resumen	1
1 Introducción	3
1.1 Conceptos teóricos de radiactividad	4
1.2 Estudio de acuíferos	10
1.3 El radón	13
1.4 Objetivos	15
2 Dispositivo experimental	16
2.1 Fuentes	16
2.2 Técnicas de medida	18
2.3 Montaje experimental	26
3 Método experimental y calibración	27
3.1 Estudios previos a la caracterización de las fuentes	27
3.2 Calibración detector NaI(Tl)	28
3.3 Factor de calibración RTM 2100	30
3.4 Test adicional sistema Radon Scout-membrana silicona para la medida de radón en agua	32
3.5 Modelización comportamiento ^{222}Rn en agua	34
4 Resultados y análisis	36
4.1 Caracterización de las fuentes	36
4.2 Control medidas de radón en agua en continuo	39
4.3 Medidas sistema Radon Scout-membrana silicona	42
4.4 Medidas parámetros físico químicos	44
4.5 Ajuste modelos MCC y MCA	45
4.6 Observaciones	47
5 Conclusiones	48
Bibliografía	50

Resumen

La medida en continuo de la concentración de radón en agua es muy útil para conocer el origen y principales características del acuífero o manantial en el que se encuentra. Así, por ejemplo, a partir de una concentración 'base' de radón en el agua, un incremento de la misma estará relacionado con un aporte al acuífero de agua subterránea con alta concentración de radón, mientras que una disminución será debida a aguas superficiales y/o de lluvia que presentan concentraciones de radón muy bajas. En el presente trabajo se ha puesto a punto un sistema de medida de radón en agua en continuo realizando medidas en un 'simulador básico de acuíferos' desarrollado en el laboratorio. Este consiste en un recipiente lleno de agua en el que es posible modificar la concentración de radón, a la vez que se dispone de información de las características físicas del agua. Para modificar la concentración de radón en el agua se han desarrollado dos fuentes específicas. La primera consiste, básicamente, en una muestra de tierra con radio que se coloca en un recipiente de cristal cerrado herméticamente con una membrana de silicona y que se introduce en el recipiente con agua. La membrana permite que el radón pase a través de ella por transporte difusivo al agua, alcanzando éstas concentraciones que dependen del radio utilizado. La segunda fuente de radón en agua que se ha desarrollado está compuesta por una caja cerrada con tierra en su interior de elevada actividad de Ra-226, un sistema de tubos de silicona insertados en el agua y una bomba de aire que realiza un circuito cerrado, arrastrando el radón generado en la caja a través de los tubos que, al igual que en el caso anterior, dejan pasar el radón al agua por difusión.

La medida de la concentración de radón en continuo se ha realizado con el dispositivo RTM 2100, calibrado en la cámara de radón del LaRUC, que además permite medir algunos parámetros físico-químicos (temperatura, humedad relativa, pH, potencial redox...). Este dispositivo mide la concentración de radón en aire y más tarde se obtiene la concentración en agua aplicando un factor de corrección. La bondad de este factor ha sido puesta de manifiesto realizando medidas del agua por medio de técnicas complementarias como espectroscopía gamma. En el trabajo se presentan los principales resultados obtenidos así como las dificultades encontradas y sugerencias para continuar en un futuro con el desarrollo de una mejor simulación de acuíferos.

Palabras clave: radiactividad, puesta a punto, radón en agua, trazador, acuíferos

Abstract

Continuous monitoring of radon concentration in water is very useful to know about its origin and the main characteristics of the aquifer or spring where that it comes from. Thus, for example, from a certain concentration of radon in water, an increase thereof is related to a contribution to the groundwater aquifer with high radon concentration, while a decrease of it will be due to rainwater with very low concentrations of radon. In this project we have set up a radon in water measurement system by monitoring continuously a 'basic aquifer simulator' developed in the lab. The simulator consists of a container full of water in which it is possible to modify radon concentration. To get high radon concentrations in water two specific sources have been used. The first one consists of a soil sample with radium placed in a glass vessel hermetically sealed by a silicone membrane, which is placed in a container with water. The membrane allows radon to pass through it by diffusive transport. Therefore radon concentration inside the vessel is diffused outside and it is dissolved in the water. The second source of radon in water developed is based on a closed circuit of radon in air. The components of the circuit are a closed container with soil samples (containing high activity Ra-226), some silicone tubes immerse in the container with water and an air pump that pumps radon from the container through the tubes. Silicone tubes have high radon diffusion coefficient, so radon can pass outside by the tubing and it is dissolved in water.

A continuous monitoring has been performed in the simulator with RTM 2100 device, that has been calibrated in the LaRUC radon chamber. Besides this device can measure some physico-chemical parameters (temperature, relative humidity, pH, redox potential...) apart from radon concentration. RTM 2100 take measures of radon concentration in air and then we get radon in water concentration by using a correction factor, that is tested out by complementary techniques such as gamma spectrometry. The main results as well as the difficulties found and suggestions to develop a better aquifer simulator in the future are presented in this project.

Key words: radioactivity, set up, radon in water, tracer, aquifers

1 Introducción

El radón ^{222}Rn es un gas noble radiactivo de origen natural que se forma como el producto de la desintegración del ^{226}Ra , perteneciente a la cadena de desintegración radiactiva del uranio ^{238}U . Se trata de un gas inerte, emisor de partículas alfa, generado tras sucesivos decaimientos a partir del ^{238}U , que es el isótopo natural más abundante del uranio. Las rocas y suelos que constituyen la corteza terrestre contienen trazas de uranio en proporción variable con su naturaleza y composición, y proporcionan por tanto una fuente continua de radón.

Existen otros dos isótopos radiactivos de origen natural de este elemento, también emisores de partículas alfa, que proceden de las cadenas radiactivas del ^{232}Th y el ^{235}U . Se trata del ^{220}Rn denominado torón, perteneciente a la familia del ^{232}Th , y el ^{219}Rn que tiene por nombre actinón y que figura en la familia del ^{235}U . Las vidas medias de estos isótopos son muy cortas, el periodo de semidesintegración del torón es de 55.6 s y el del actinón de 3.96 s. El ^{222}Rn procedente del ^{226}Ra ($T_{1/2} = 1620$ años) en la cadena radiactiva del ^{238}U , es el isótopo al que se denomina propiamente radón y tiene un periodo de semidesintegración de 3.824 días. Debido a sus vidas medias, habitualmente solo se tiene en cuenta el radón (^{222}Rn), ya que tras un minuto es el único isótopo que permanece en una proporción significativa.

El radón forma parte del grupo de los gases nobles, que se caracterizan por tener una estructura atómica tan estable que no necesitan combinarse con ningún elemento químico [1]. Como resultado de su configuración de gas noble, el radón se comporta químicamente inerte y por tanto su comportamiento está determinado por los procesos físicos y no por las interacciones químicas. Esta propiedad junto con su vida media y su carácter gaseoso hacen que el radón tenga gran movilidad, pudiendo escapar y moverse distancias relativamente cortas desde su fuente de origen, ya sea por procesos de difusión o arrastre. El radón puede ser transportado tanto como un gas individual como disuelto en otros fluidos como aguas subterráneas o petróleo.

La abundancia de este elemento y algunas de sus características, como su estado gaseoso, la ausencia de reactividad química y su movilidad en el ambiente natural, hacen que sea considerado un indicador ambiental muy interesante. Por ello el radón es empleado como trazador ambiental en hidrología, geofísica, geoquímica, oceanografía y otros estudios ambientales con diversas aplicaciones en distintos ámbitos y problemas. Algunos ejemplos de ello se describen a continuación.

El radón se puede utilizar como trazador atmosférico para el estudio de la dinámica atmosférica. La determinación de la concentración de radón en puntos de la troposfera e instantes definidos resulta ser buen indicador de las masas de aire, tanto para estudiar su transporte como la difusión de las mismas [2]. Asimismo, el radón es potencialmente un buen indicador para la predicción de eventos sísmicos como terremotos, si bien para ello se necesitan series temporales muy extensas y muchos puntos de muestreo.

Se puede usar como una herramienta para registrar la probabilidad de que ocurran este tipo de accidentes, por medio de anomalías de la concentración de radón que se presentan en movimientos del terreno [3]. Y también puede ser empleado como indicador en el seguimiento de las vías de transporte en acuíferos y sistemas de agua superficial o para la cuantificación de las tasas de mezcla [4].

1.1 Conceptos teóricos de radiactividad

Las tres grandes cadenas naturales de desintegración radiactiva tienen como elementos principales el uranio-238, el uranio-235 y el torio-232. Estos elementos radiactivos se incorporaron a la Tierra en sus primeras etapas y aun hoy permanecen debido a sus periodos de semidesintegración: ^{238}U ($T_{1/2} = 4.5 \cdot 10^9$ años), ^{235}U ($T_{1/2} = 7 \cdot 10^8$ años) y ^{232}Th ($T_{1/2} = 1.4 \cdot 10^{10}$ años), similares a la edad estimada de la Tierra alrededor de $4.7 \cdot 10^9$ años.

Estas cadenas radiactivas de origen natural terminan con la formación de un isótopo estable de plomo, pero durante su decaimiento se producen una serie de elementos radiactivos intermedios. En cada una de las tres series se encuentra un determinado isótopo del gas radón. Dichos isótopos, ya mencionados en la introducción, son el radón ^{222}Rn , el actinón ^{219}Rn y el torón ^{220}Rn .

Las desintegraciones radiactivas que tienen lugar a lo largo de las cadenas radiactivas se producen por decaimientos de tipo alfa y beta.

Desintegración alfa

La desintegración alfa consiste en la emisión espontánea de una partícula alfa (^4_2He) por un núcleo de número atómico grande. Esta emisión alfa se debe a un efecto de repulsión de Coulomb y resulta más importante en núcleos pesados, ya que la energía de Coulomb repulsiva aumenta con el tamaño del núcleo más rápidamente que la fuerza de ligadura nuclear, que crece con el número de nucleones [5].

La siguiente expresión muestra una visión esquemática de este decaimiento radiactivo:



donde X representa el núcleo padre, Y el núcleo hijo, Z el número atómico y A el número másico.

Este proceso tiene lugar espontáneamente porque es energéticamente favorable, ya que la masa del núcleo padre es mayor que la masa del núcleo descendiente más la partícula alfa. La reducción de masa del sistema se traduce en energía equivalente a la diferencia de masa y es liberada durante el decaimiento. Prácticamente toda esta energía liberada se la lleva la partícula como energía cinética y se puede expresar como:

$$E = [M_{Z,A} - (M_{Z-2,A-4} + M_{2,4})]c^2 \quad (2)$$

donde $M_{Z,A}$, $M_{Z-2,A-4}$ y $M_{2,4}$ son las masas atómicas del núcleo padre, del núcleo hijo y de la partícula alfa [6].

Un ejemplo de desintegración alfa es el del ^{226}Ra en la cadena radiactiva del ^{238}U :



Desintegración beta

La desintegración beta consiste en la emisión o absorción espontánea de un electrón o positrón por un núcleo. Este decaimiento radiactivo es muy común entre los núcleos que están lejos del ‘valle de estabilidad’ y es conocido como ‘fuerza nuclear débil’ o ‘interacción débil’ bajo las leyes de la física [7].

El proceso de desintegración beta más básico involucra un núcleo atómico en el que un neutrón se convierte en un protón, un electrón y un antineutrino. También existen otros dos tipos de desintegración beta: decaimiento β^+ , donde un protón de un núcleo atómico se transforma en un neutrón, un positrón y un neutrino, y captura electrónica. Aunque el número de protones y neutrones del núcleo atómico cambia en estos procesos durante el decaimiento, el número total de nucleones permanece constante.

Los distintos esquemas de los procesos de desintegración beta se muestran a continuación:

- Decaimiento β^- : $n \longrightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e$
- Decaimiento β^+ : $p \longrightarrow n + e^+ + \nu_e$
- Captura electrónica: $p + e^- \longrightarrow n + \nu_e$

El decaimiento beta es muy común en núcleos pesados donde se incluyen los núcleos producidos en los procesos de fisión o la radiación cósmica. Pero algunos radionúclidos artificiales con alto número de protones también se desintegran por decaimiento beta.

La mayoría de decaimientos alfa y beta y, en general, la mayoría de reacciones nucleares dejan el núcleo final en un estado excitado. Entonces se produce un decaimiento gamma, que consiste en la emisión espontánea de fotones de alta energía cuando un núcleo realiza una transición de un estado excitado a un estado de menor energía. Los rayos gamma son fotones de radiación electromagnética, de naturaleza similar a la de la luz visible, y tienen energías típicas en el intervalo de 0.1 a 10 MeV. Otro proceso alternativo que tiene lugar en el interior del núcleo es la denominada ‘conversión interna’. En este proceso la energía disponible del estado excitado se transfiere a un electrón de la capa interna y este es eyectado. Como consecuencia, la vacante electrónica se llena con un electrón de una capa externa y se emiten rayos X [5] [6].

En las Figuras 1 y 2 se muestran las cadenas de desintegración radiactiva del ^{238}U a partir del ^{226}Ra y del ^{232}Th a partir del ^{224}Ra , donde se pueden apreciar los modos de decaimiento y los distintos elementos que se forman.

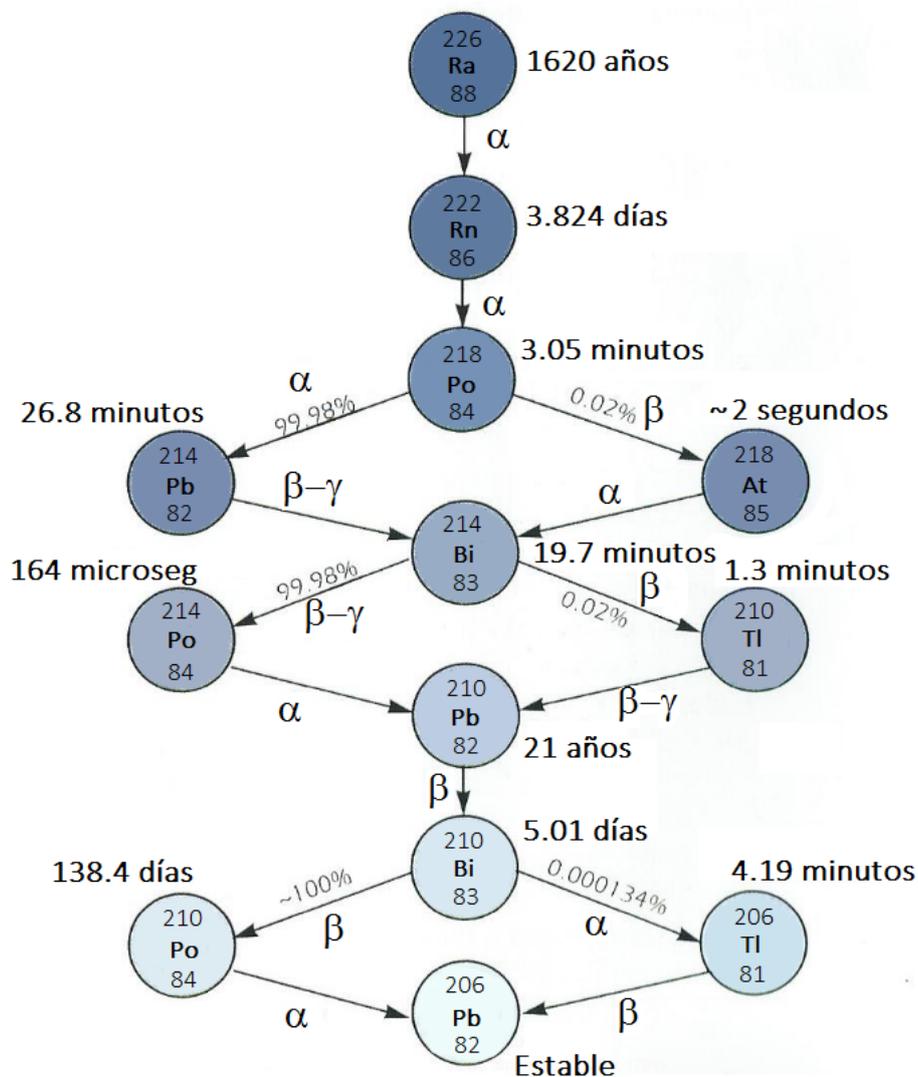


Figura 1: Esquema de la cadena de desintegración radiactiva del ^{238}U a partir del ^{226}Ra . Se muestran los elementos, el tipo de decaimiento (alfa, beta y gamma) y los periodos de semidesintegración. En los casos que existen varias vías de desintegración se muestra la probabilidad de cada modo.

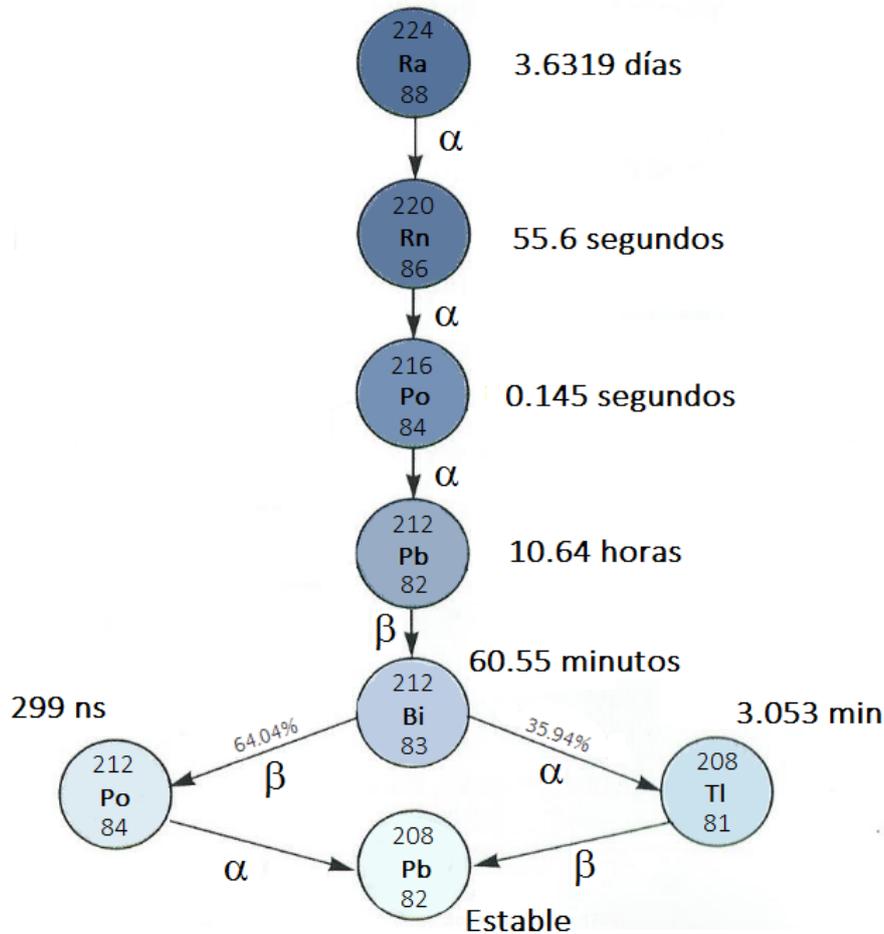


Figura 2: Esquema de la cadena de desintegración radiactiva del ^{232}Th a partir del ^{224}Ra . Se muestran los elementos, el tipo de decaimiento y los periodos de semidesintegración. En los casos que existen varias vías de desintegración se muestra la probabilidad de cada modo.

Ley de desintegración radiactiva

Cuando se tiene una muestra radiactiva, se puede considerar como un sistema que contiene muchos núcleos de la misma especie en un instante inicial. La probabilidad por unidad de tiempo de que un núcleo dado se desintegre (por emisión alfa o bien por beta o gamma) se conoce con el nombre de constante de desintegración radiactiva, λ . La actividad de la muestra radiactiva, es decir, el número de desintegraciones radiactivas por unidad de tiempo se relaciona con la constante de desintegración según la siguiente expresión:

$$A = \frac{dN}{dt} = -\lambda N(t) \quad (3)$$

donde $N(t)$ es el número de núcleos radiactivos en la muestra para un instante t .

La actividad se mide en bequerelios Bq, que equivalen a desintegraciones por segundo ($1 \text{ Bq} = 1 \text{ desintegración s}^{-1}$). La antigua unidad empleada para la actividad

era el Curio Ci, que corresponde a la actividad de un gramo de ^{226}Ra , y su equivalencia en bequerelios es $1 \text{ Ci} = 3.7 \cdot 10^{10} \text{ Bq}$.

Para conocer la actividad de una muestra en un determinado instante $A(t)$, basta con integrar la ecuación (3), teniendo en cuenta que en el instante inicial $t = 0$ el número de núcleos es N_0 . Se obtiene entonces la ecuación siguiente:

$$A(t) = \lambda N_0 e^{-\lambda t} \quad (4)$$

El periodo de semidesintegración se define como el tiempo tras el cual el número inicial de núcleos se ha reducido a la mitad $N(t) = N_0/2$. Se trata de un parámetro característico de cada especie nuclear y se relaciona con la constante de desintegración radiactiva como:

$$T_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad (5)$$

En el caso de las cadenas radiactivas, los productos de las desintegraciones son a su vez radiactivos y dan lugar a sus propios descendientes. Si se considera una cadena de desintegración radiactiva con tres isótopos $1 \rightarrow 2 \rightarrow 3$ donde 3 es estable y, suponiendo que en el instante inicial solo hay núcleos padre, las ecuaciones que se tienen son las siguientes:

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1 \longrightarrow N_1(t) = N_0 e^{-\lambda_1 t} \\ \frac{dN_2}{dt} &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \longrightarrow N_2(t) = N_0 \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \\ \frac{dN_3}{dt} &= \lambda_2 N_2 \longrightarrow N_3(t) = N_0 \left\{ 1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (\lambda_1 e^{-\lambda_2 t} - \lambda_2 e^{-\lambda_1 t}) \right\} \end{aligned} \quad (6)$$

donde λ_1 y λ_2 son las respectivas constantes de desintegración radiactiva y N_1 , N_2 y N_3 el número de núcleos de los isótopos 1, 2 y 3 [8].

Las ecuaciones (6) son las ecuaciones de Bateman correspondientes a una cadena de tres elementos. En general para una cadena de desintegración radiactiva con n isótopos, la actividad del isótopo n se puede obtener a partir de las ecuaciones de Bateman como:

$$A_n = N_0 \sum_{i=1}^n c_i e^{-\lambda_i t} \quad \text{siendo} \quad c_i = \frac{\prod_{j=1}^n \lambda_j}{\prod_{j=1, j \neq i}^n (\lambda_j - \lambda_i)} \quad (7)$$

Las correspondientes actividades del núcleo padre (isótopo 1) y el núcleo hijo (isótopo 2) de la cadena de desintegración planteada en las ecuaciones (6) se pueden escribir como:

$$\begin{aligned}
A_1 &= A_0 e^{-\lambda_1 t} \\
A_2 &= A_0 \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t})
\end{aligned}
\tag{8}$$

donde A_0 es la actividad inicial de la muestra.

Dependiendo de la relación entre las constantes de decaimiento dentro de la cadena radiactiva, pueden darse tres situaciones: equilibrio secular $\lambda_2 \gg \lambda_1$, equilibrio transitorio $\lambda_2 > \lambda_1$ y situación de no equilibrio $\lambda_2 < \lambda_1$.

En la cadena radiactiva del ^{238}U se da la situación de equilibrio secular entre el ^{222}Rn y sus descendientes. Al cabo de un tiempo se alcanza un equilibrio en el que la cantidad de isótopos radiactivos permanece constante. En el equilibrio la tasa de desintegración del núcleo hijo se iguala a la del padre, es decir, las actividades del núcleo padre e hijo se igualan:

$$A_1 = A_2 \approx A_0(1 - e^{-\lambda_2 t}) \tag{9}$$

En la Figura 3 se muestra la actividad de algunos de los descendientes de vida corta más importantes del ^{222}Rn en función del tiempo, con respecto a la actividad del ^{222}Rn . En ella se observa que todos los isótopos alcanzan el equilibrio secular al cabo de algo más de 3 horas.

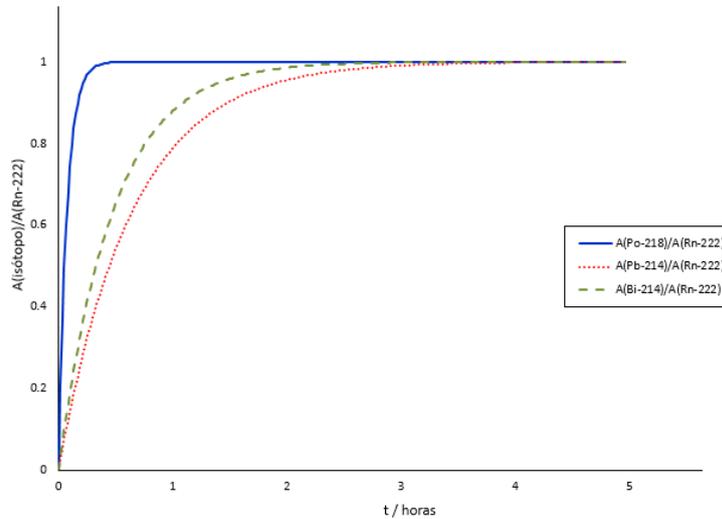


Figura 3: Representación gráfica de la relación de actividades entre isótopos y el ^{222}Rn en función del tiempo. La línea continua (azul) corresponde a la actividad del isótopo ^{218}Po , la línea de guiones (verde) corresponde al ^{214}Pb y la línea de puntos (roja) al ^{214}Bi .

1.2 Estudio de acuíferos

La hidrología subterránea se encarga del estudio del almacenamiento, la circulación y la distribución de las aguas terrestres en la zona saturada de las formaciones geológicas, es decir, el estudio de las aguas subterráneas. Y lo hace teniendo en cuenta sus propiedades físicas y químicas, sus interacciones con el medio físico y biológico y sus reacciones a la acción del hombre [9].

El agua subterránea constituye una de las etapas del ciclo del agua, y se trata de agua subsuperficial que ocupa los poros, huecos, fisuras y cavidades del material sólido presente en las formaciones geológicas [10].

Atendiendo a la presencia del agua, se pueden diferenciar en el suelo un substrato impermeable y un substrato permeable. El substrato permeable está formado a su vez por una zona de saturación y una zona no saturada también conocida como zona de aireación o vadosa. En la Figura 4 se muestra un esquema de las zonas del suelo.

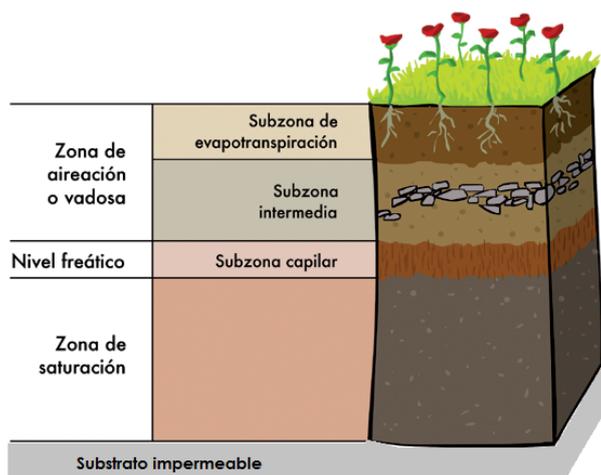


Figura 4: Dibujo esquemático de las zonas en que se divide el suelo en función de la presencia de agua.

El substrato impermeable es un estrato rocoso profundo que se comporta como impermeable debido a las fuertes presiones y su composición.

La zona de saturación descansa sobre el substrato impermeable y está limitada en la parte superior por el nivel freático, que está sometido a la presión atmosférica. En esta zona el agua llena por completo los vacíos que existen entre los materiales del suelo.

La zona de aireación se encuentra entre el nivel freático y la superficie del terreno y en ella se distinguen a su vez tres subzonas:

- Subzona de evapotranspiración: dependiendo de la presencia de vegetación puede tener un espesor muy pequeño -sin vegetación- o alcanzar grandes profundidades

en caso de abundante vegetación. Está situada entre la superficie del terreno y los extremos de las raíces de la vegetación, y en ella se da la infiltración del agua de lluvia, la evaporación y la transpiración.

- Subzona intermedia: de espesor variable, tiene características similares a la subzona de evapotranspiración y se encuentra debajo de ella.
- Subzona capilar: es una región de transición hacia la zona de saturación y está en parte saturada por la parte inferior.

Definición de acuífero

Se define acuífero como una formación geológica con gran capacidad de almacenamiento -elevada porosidad- y gran facilidad de desplazamiento o transmisión del agua a su través. Pero además del acuífero, existen otras formas de comportamiento del terreno frente al agua subterránea [9]:

- Acuicludo: formación geológica que almacena agua en su interior, incluso hasta la saturación, pero no la transmite.
- Acuitardo: formación geológica que almacena agua y la transmite muy lentamente.
- Acuífugo: formación geológica que no almacena agua ni la transmite.

Hay varios tipos de acuíferos y pueden clasificarse según varios criterios: según la presión hidrostática se distingue entre acuíferos libres y confinados; según el tipo de materiales que los constituyen puede haber acuíferos porosos y fisurados o kársticos, y según la ubicación geográfica pueden ser acuíferos costeros o continentales.

Los acuíferos libres, también denominados freáticos o no confinados, son aquellos que están en contacto con el aire a presión atmosférica, ya que poseen una superficie libre. Por el contrario en los acuíferos confinados no existe contacto directo con la atmósfera, están aislados por un estrato impermeable y el agua está sometida a presión mayor que la atmosférica, ocupando por completo los poros o huecos de la formación geológica.

Los acuíferos porosos son aquellos en que la circulación del agua se produce a través de los poros o espacios existentes entre los granos del terreno. En cambio, en los acuíferos fisurados o kársticos el agua circula por las fisuras, grietas y oquedades del terreno.

Por último, la última clasificación mencionada distingue entre acuíferos costeros, que son aquellos que están en parte invadidos por agua salada ya que están en contacto hidráulico con el mar, y acuíferos interiores o continentales que carecen de contacto alguno con el mar y pueden o no estar relacionados hidráulicamente con ríos o lagos [9].

Recarga de acuíferos

En general en los acuíferos pueden definirse tres zonas que son la zona de recarga, la de circulación y la de descarga. En este trabajo el concepto de vaciado y recarga de acuíferos es de gran interés.

Se define la recarga como la entrada de agua dentro de la zona saturada del acuífero, y puede producirse tanto por movimientos descendentes de agua efecto de la fuerza de gravedad, como por movimientos de flujo horizontal desde otras capas de los suelos. El estudio de la recarga de acuíferos es importante para conocer la cantidad de agua, así como su calidad y procedencia, además de las posibles zonas donde existen flujos subterráneos.

La recarga de acuíferos puede producirse tanto de forma natural como artificial. La recarga natural puede darse por precipitación, a través de aguas superficiales como ríos y lagos, o por transmisión desde otros acuíferos. Y la recarga artificial puede ser mediante infiltración de agua desde depósitos, pozos, irrigación o fugas en redes de suministro [10].

La descarga de acuíferos también puede darse por procesos naturales, a través de manantiales, ríos o directamente al mar en el caso de acuíferos costeros, y por medio procesos artificiales, mediante captaciones subterráneas.

Identificar las zonas de recarga y descarga de acuíferos y cuantificar los flujos de agua subterránea son tareas necesarias para la gestión hídrica. El conocimiento de las zonas de recarga juega un papel importante para estudiar el transporte de contaminantes, poder localizar regiones de depósitos radioactivos, realizar un uso sostenible de las aguas subterráneas o definir zonas vulnerables a la contaminación, entre otros aspectos.

En la recarga de los acuíferos intervienen muchos parámetros que habitualmente son difíciles de determinar, algunas de las variables que influyen en el proceso son espaciales y temporales. Por ejemplo, en función del tiempo pueden encontrarse varios patrones de recarga como la recarga a corto plazo, de forma ocasional tras una fuerte lluvia, o la recarga estacional, que se produce regularmente. Además el concepto de recarga histórica también es interesante, se trata de una recarga de gran antigüedad que contribuyó a la formación de los recursos actuales del agua subterránea.

Para el estudio de la recarga de acuíferos pueden emplearse varios métodos y herramientas disponibles siendo los más comunes las medidas directas, los balances hídricos y el uso de trazadores.

Los métodos basados en trazadores consisten en utilizar indicadores presentes en el agua y rastrearlos para determinar los desplazamientos del agua, la cantidad de flujo de las reservas subterráneas o las fuentes que originan la recarga. Los

trazadores pueden ser ambientales, como isótopos, o trazadores artificiales que se añaden intencionadamente. También puede haber trazadores históricos, que son aquellos depositados en grandes concentraciones en el pasado por algún evento histórico, como las pruebas nucleares en la atmósfera o los derrames de contaminantes.

Los trazadores tienen que poseer ciertas características específicas, deben ser solubles en el agua, no ser reactivos ni transformarse durante el transporte y, además, deben ser medibles y de fácil extracción del suelo. En caso de utilizar trazadores artificiales, estos deben cumplir requisitos adicionales como tener baja toxicidad, baja radioactividad y representar bajos niveles naturales en el ambiente.

Los principales trazadores utilizados son isótopos, tanto estables como radiactivos, algunos elementos (p.ej. cloruro, nitrato o bromuro), la temperatura y colorantes artificiales.

En general las ventajas de utilizar trazadores son que su movimiento está dirigido por el flujo de agua que conduce las descargas y recargas, y que representan aproximadamente una entrada uniforme a la zona no saturada de un sistema acuífero. Además el uso combinado de más de un trazador puede conducir a mejores resultados.

El radón ^{222}Rn se utiliza como trazador isotópico ambiental, dada su elevada concentración en las aguas subterráneas con respecto a las superficiales, puede emplearse como indicador de flujos de descarga de agua subterránea a cuerpos de agua superficial.

1.3 El radón

El radón es un gas radiactivo incoloro, inodoro e insípido con peso atómico 222 u y número atómico 86. En condiciones normales de presión y temperatura (1 atm y 0 °C) se presenta en forma de gas monoatómico con densidad 9.73 kg m^{-3} , lo que le convierte en el gas noble más denso y uno de los gases más densos a temperatura ambiente. Además, debido a su condición de gas noble el radón no es reactivo químicamente, por lo que resulta tener movilidad alta.

El radón también es el gas noble más soluble en agua, aunque es mucho más soluble en disolventes orgánicos que en agua. Hay estudios que indican que altas concentraciones de fluoruro aumentan la solubilidad en agua del radón. Como es improbable que el radón reaccione químicamente con el flúor, la explicación para esto es un proceso físico, y es que la presencia de altas concentraciones de fluoruro puede afectar a la difusión molecular del radón, reduciendo así su movilidad y facilitando que se disuelva en el agua [11].

La solubilidad depende, además de la naturaleza del soluto y disolvente, de la temperatura y la presión. En el caso de los gases, como el radón, su solubilidad aumenta proporcionalmente con la presión parcial que el gas ejerce sobre el líquido,

según la Ley de Henry.

Para el radón la solubilidad en el agua viene dada por el coeficiente de Ostwald, que se define como la relación entre concentración de radón en agua y concentración de radón en aire:

$$K_{\text{Ostwald}} = \frac{C_{\text{Rn,agua}}}{C_{\text{Rn,aire}}} \quad (10)$$

El coeficiente de Ostwald para una presión de 1 atm puede aproximarse por la siguiente función, en el rango entre 0 y 40 °C:

$$K_{\text{Ostwald}} = 0.425 e^{-0.05T} + 0.1 \quad (11)$$

donde T es la temperatura del agua en grados Celsius °C [12].

En la Figura 5 se muestra la representación gráfica del coeficiente de Ostwald frente a la temperatura. En ella se observa que la solubilidad del radón en agua disminuye cuando la temperatura del agua aumenta.

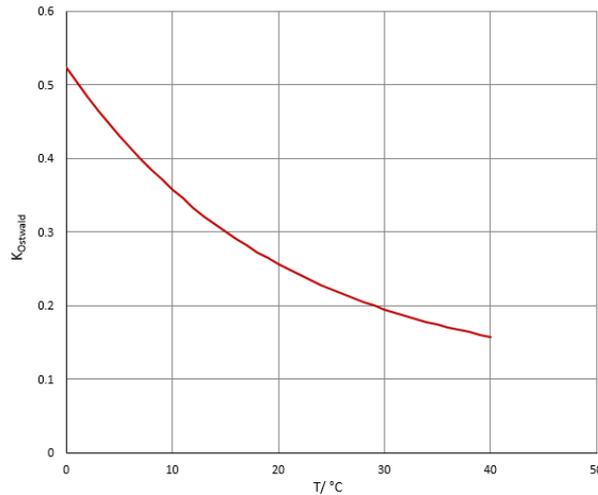


Figura 5: Representación gráfica del coeficiente de Ostwald en función de la temperatura en °C, a una presión fija de 1 atm, según la expresión (11).

Los niveles de concentración del radón natural disuelto en agua revelan un amplio rango. En aguas superficiales como ríos y lagos los niveles de concentración de radón son bajos, del orden de pocos kBq m^{-3} , mientras que en aguas subterráneas las concentraciones de radón van desde 1 a 50 kBq m^{-3} en acuíferos y rocas sedimentarias, de 10 a 300 kBq m^{-3} en pozos muy profundos y de 100 a 50000 kBq m^{-3} en rocas cristalinas [13]. Los altos niveles de concentración de radón se asocian con la presencia de altas concentraciones de uranio subterráneo.

El radón también forma parte en una pequeña proporción de la composición del aire atmosférico. Los gases que predominan en el aire son el oxígeno (21 % vol.) y el nitrógeno (78 % vol.). Mientras que los gases nobles, entre ellos el Rn, tan solo están presentes a niveles de traza, a excepción del Ar que representa casi el 1 % vol.

Los gases presentes en la atmósfera pueden ser disueltos en el agua de lluvia y eventualmente alcanzar un acuífero, por lo que cabe la posibilidad de que parte del radón pueda llegar a las aguas subterráneas por esta vía [11].

Los gases disueltos presentes en la naturaleza pueden servir como indicadores naturales, con la ventaja de que se presentan libres y en abundancia, como es el caso del radón. Si se comparan las concentraciones de gases producidos en el suelo y absorbidos por filtración de aguas en manantiales o agua subterráneas, con las concentraciones de gases en agua de lluvia, se puede obtener información útil acerca de los procesos de transporte de las aguas.

Estos procesos ocupan un rango temporal muy amplio, desde horas hasta años, por lo tanto resulta interesante la medida en continuo de la concentración, con resolución temporal del orden de una hora, en lugar de realizar muestreos periódicos.

1.4 Objetivos

El estudio de acuíferos reales presenta un problema importante, que es la dificultad de realizar medidas de campo en continuo. En este trabajo se pretende desarrollar en el laboratorio un simulador básico de acuíferos, que va a permitir tanto el muestreo como la medida en continuo de la concentración de radón en agua. Para ello, se van a generar distintas concentraciones de radón en agua a través de varias muestras de tierra con alto contenido en radio ^{226}Ra .

El objetivo principal del trabajo es poner a punto un sistema de medida de radón en agua en continuo, que luego permita medir las variaciones de la concentración de radón en el agua al simular situaciones de recarga y descarga de acuíferos.

2 Dispositivo experimental

El estudio en el que se basa este trabajo se ha llevado a cabo en las instalaciones del Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Cantabria (LaRUC).

Antes de llevar a cabo medidas en continuo de agua con cierta concentración de radón, primero se han tenido que desarrollar fuentes específicas generadoras de radón en agua. Principalmente se han desarrollado dos modelos de fuentes generadoras a partir de muestras de tierra con alto contenido en ^{226}Ra , que se explican con más detalle a continuación.

2.1 Fuentes

El primer tipo de fuente desarrollado consiste en una muestra de tierra con radio ^{226}Ra , de la que se conoce su masa y su actividad, colocada en el interior de un recipiente de cristal que se cierra herméticamente con una membrana de silicona y se sumerge dentro de un recipiente con cierto volumen de agua.

La membrana de silicona impide que entre agua en el interior del recipiente, pero permite el paso del radón por transporte difusivo. La muestra de tierra con ^{226}Ra genera radón ^{222}Rn dentro del recipiente de cristal según su cadena de desintegración radiactiva y este se difunde al exterior a través de la membrana de silicona. Entonces el radón que sale se disuelve en el agua, dando lugar a una concentración de radón en agua. Además, para que el recipiente permanezca en el fondo al sumergirlo en el volumen de agua, se colocan varios lastres de plomo en su interior.

En la Figura 6 se muestra una imagen de una fuente de este tipo utilizada en el estudio.



Figura 6: Fuente de radón en agua. A la derecha: muestra de tierra en el interior de un bol de cristal con lastres de plomo y cerrado con una membrana de silicona; a la izquierda: cubo de agua donde se sumerge la fuente.

El otro modelo de fuente desarrollada consiste en un circuito cerrado por el que circula radón en aire, que está formado por una caja sellada que contiene muestras de tierra, una bomba de aire, tubos de silicona y otros tubos conectores.

Al igual que en la fuente anterior, las muestras de tierra encerradas en la caja contienen ^{226}Ra y siguiendo la cadena de desintegración radiactiva generan ^{222}Rn y otros descendientes, dando lugar a una cierta concentración de radón en aire en el interior de la caja, que pasa a los tubos de silicona inmersos en un recipiente con agua. La bomba de aire, que se pone en funcionamiento con un flujo de aire lento, arrastra el radón generado en la caja por todo el circuito. Y el tubo de silicona sumergido en el recipiente con cierto volumen de agua, igual que la membrana usada para la otra fuente, permite el transporte por difusión de forma que el radón en aire dentro del tubo escapa al exterior del mismo y se disuelve en el agua.

Los tubos conectores que tiene el circuito entre la bomba y la caja son de otro material que minimiza la difusión molecular del radón, por lo que todo el radón que se genera dentro del circuito de aire es difundido al agua.

Además, en caso de querer generar una mayor concentración de radón en aire en el circuito se ha añadido en serie una fuente de radón de actividad conocida. En este caso se ha utilizado el modelo RN-1025 de la empresa PYLON Electronics, una fuente que tiene una actividad en el equilibrio de 104.4 kBq, con fecha del 10/12/1993 y cuyo flujo continuamente disponible es de $1.313 \cdot 10^4 \text{ mBq min}^{-1}$, que también ha servido como control de calidad para las fuentes preparadas.

En la Figura 7 se puede ver una fotografía de esta fuente desarrollada en el laboratorio.



Figura 7: Fuente de radón en agua donde se distingue un cubo lleno de agua con tubos de silicona dentro, conectado a una bomba de aire, muestras de tierra en una caja y una fuente de radón.

2.2 Técnicas de medida

Las medidas de la concentración de ^{222}Rn disuelto en agua, tras haber desarrollado fuentes específicas de radón en agua para este estudio, se han realizado de forma continua en distintos periodos a lo largo de los meses de marzo, abril, mayo y junio de 2015.

Para realizar dichas medidas se han utilizado esencialmente dos técnicas: en primer lugar, las medidas de radón en continuo se han realizado en el monitor de radón y torón GEO-RTM 2100 y, en segundo lugar, se han hecho medidas mediante espectrometría gamma en un detector de centelleo de NaI(Tl).

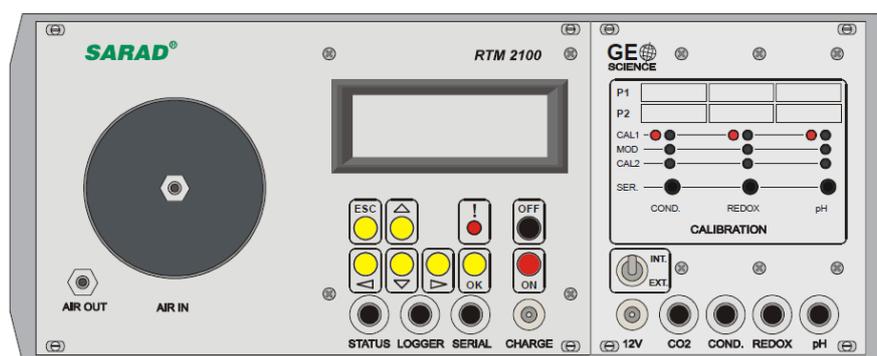
Durante la última parte del proceso de medida se ha empleado también el dispositivo Radon Scout de medida de radón en aire para realizar medidas dentro del agua.

Asimismo, para la caracterización de las fuentes se han realizado medidas de concentración de radón en aire y se han utilizado células de Lucas y otros dispositivos de medida en continuo como Alpha E.

GEO-RTM 2100

El dispositivo GEO-RTM 2100 es un sistema integrado de medida, diseñado por la compañía SARAD [14], que se utiliza para medir en continuo la concentración de gas radón disuelto en agua y otros parámetros físico-químicos.

El RTM 2100 es un monitor que permite medir de forma continua la concentración de los isótopos ^{222}Rn y ^{220}Rn , además del flujo de aire que entra, la presión ambiente, la humedad y la temperatura del aire. La versión GEO-RTM 2100 que se ha utilizado en este trabajo, es una edición especial que cuenta con características adicionales relacionadas con análisis de gas y agua. En la Figura 8 se muestra una imagen de la parte frontal de este dispositivo.



GEO-RTM 2100 edition

Figura 8: Dibujo de la parte frontal del dispositivo GEO-RTM 2100.

En el interior del aparato RTM 2100 hay instalada una bomba que permite la entrada de una corriente de aire de forma continua, hacia la cámara de medida. En la Figura 8 se puede ver la entrada y salida del aire a la cámara del detector, por las tomas AIR IN y AIR OUT situadas en la parte izquierda.

El aire al entrar pasa por un filtro en dos etapas que evita el paso de los descendientes del radón y el torón, de forma que solo pueden pasar por la válvula de entrada los gases ^{222}Rn y ^{220}Rn .

Una vez en el interior del dispositivo, estos gases son sometidos al campo electrostático generado entre la pared de la cámara y la superficie del detector semiconductor de silicio, que forman un par de electrodos y son alimentados con alto voltaje. En la Figura 9 se puede ver un esquema del sistema de detección dentro del dispositivo.

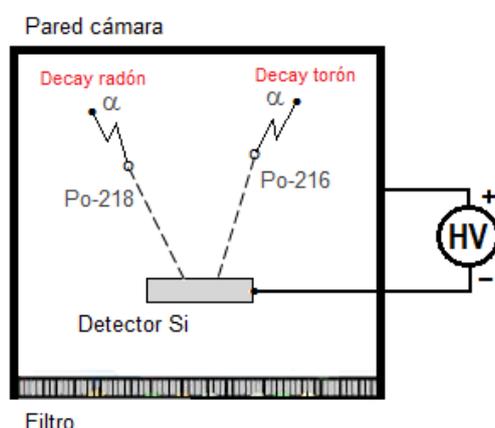


Figura 9: Esquema del sistema de detección en el interior del dispositivo GEO-RTM 2100.

Durante la desintegración alfa del $^{220}\text{Rn}/^{222}\text{Rn}$, los nucleídos derivados $^{216}\text{Po}/^{218}\text{Po}$ son ionizados, y bajo la influencia de las fuerzas del campo se dirigen hacia la superficie del detector. El decaimiento alfa de los descendientes de vida corta es registrado por el detector con una estadística del 50 %, puesto que únicamente se contemplan la mitad de las desintegraciones. De este modo, el número de pulsos contados de $^{216}\text{Po}/^{218}\text{Po}$ es una medida para la concentración de $^{220}\text{Rn}/^{222}\text{Rn}$ en la muestra de aire.

Para incrementar la estadística de cuentas casi un factor dos, también se puede incluir el ^{214}Po para la determinación del radón. Este se forma posteriormente en la cadena de desintegración del ^{218}Po situado en el detector, por lo tanto cada cuenta de ^{218}Po va seguida de una cuenta de ^{214}Po . Sin embargo, el tiempo de respuesta también aumenta debido a la media del periodo de semidesintegración de sus productos descendientes ^{214}Pb y ^{214}Bi . En la Figura 1 (véase apartado 1.1) se puede ver la cadena de desintegración del ^{222}Rn y los periodos de semidesintegración de los descendientes mencionados.

La eficiencia de fijación del detector ε depende esencialmente de la humedad absoluta (aH), debido a la descarga por moléculas de agua. La relación se muestra en la ecuación (12):

$$\varepsilon = f(aH) \quad \varepsilon = k_2 + k_0 e^{\frac{-aH}{k_1}} \quad (12)$$

donde k_0 , k_1 y k_2 son parámetros variables que están programados en el aparato después del proceso de calibración de práctica, y las unidades de la eficiencia son $\text{cpm m}^3 \text{ kBq}^{-1}$.

La concentración de Rn-222 se calcula según la siguiente expresión:

$$C_{\text{Rn-222}} = \frac{N}{\varepsilon(aH)t} \quad (13)$$

donde t es el intervalo de tiempo y N es el número de cuentas de ^{218}Po (^{214}Po) registradas durante el intervalo de tiempo.

Para separar las cuentas de los nucleídos relevantes como el ^{218}Po (^{214}Po) de otros descendientes, el detector cuenta con un sistema de espectroscopia alfa con 4 ventanas de energía o regiones de interés (ROI: Region Of Interest). Las regiones de interés están asignadas a los nucleídos alfa del siguiente modo, la ROI 1 corresponde al $^{218}\text{Po}/^{212}\text{Bi}$, la ROI 2 al ^{216}Po , la ROI 3 al ^{214}Po y finalmente, la ROI 4 corresponde al ^{212}Po . En la Figura 10 se muestra el espectro en energía adquirido por el dispositivo RTM 2100, donde se observan las distintas ROI y las cuentas de los isótopos que corresponden a cada una de ellas.

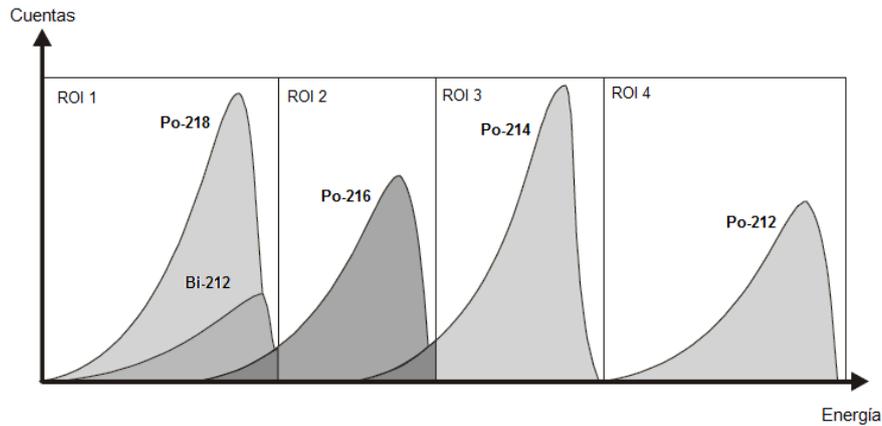


Figura 10: Representación gráfica del espectro en energía adquirido por el dispositivo RTM con gas radón y torón en el interior de la cámara de medida.

El ^{210}Po , descendiente del ^{222}Rn con un periodo de semidesintegración de 138.4 días, aunque libera energía dentro de las ROIs mencionadas no da lugar a un incremento del fondo debido a su larga vida media. Por lo tanto, no se esperan anomalías significativas en el espectro.

En los picos del espectro mostrado en la Figura 10 se observa una ‘cola’ en la parte izquierda. Dicha cola es generada por la capa de protección del detector, que provoca pérdidas de energía en las partículas alfa antes de entrar en la región sensible del detector.

La pequeña superposición de un pico vecino en una ROI, como se aprecia en el espectro de la Figura 10 en tono más oscuro, puede perturbar el número de cuentas de la ROI. Sin embargo, la superposición de los picos es constante para todos los canales, ya que solo depende de la geometría del detector. Por lo tanto se pueden calcular unos valores de corrección para el contaje de cada isótopo, que se instalan durante el proceso de calibración.

También se observa en el espectro que el ^{212}Bi tiene casi la misma energía que el ^{218}Po , de forma que no se pueden separar el uno del otro. Pero es posible calcular las cuentas correspondientes al ^{212}Bi a partir del ^{212}Po , que se detecta sin perturbaciones y pertenece junto con el ^{212}Bi a la cadena radiactiva del torón, como se puede ver en la Figura 2 (véase apartado 1.1).

Las cadenas de desintegración $^{216}\text{Po} \rightarrow ^{212}\text{Po}$ y $^{216}\text{Po} \rightarrow ^{212}\text{Bi}$ tienen el mismo tiempo característico, por lo que se obtiene la proporción 1:2 entre los nucleidos ^{212}Po y ^{212}Bi . De esta forma se obtiene un valor para las cuentas del ^{212}Bi , que luego se resta en la ROI 1 y se consigue la suma de cuentas correcta para el ^{218}Po .

Debido al carácter radiactivo del radón, cualquier análisis basado en el registro de sucesos de decaimiento va acompañado de un error estadístico que está afectado por el número total de impulsos contados. Cuanto mayor sea el número total de cuentas, el error en el contaje será menor. Para mantener el error tan bajo como sea razonable, se debe alcanzar un máximo de cuentas en un intervalo de medida. Para una sensibilidad del instrumento dada y una cierta concentración de radón, un muy buen error debe alcanzarse seleccionando un intervalo de tiempo y el modo de medida apropiados.

El dispositivo RTM 2100 presenta tres modos de medida: Radon Fast, Radon Slow y Thoron. En ese trabajo el objetivo es medir concentraciones de radón (Rn-222) por lo que el modo para medir torón queda descartado.

En cuanto al tiempo de medida, el modo Slow es el recomendado en caso de que sea necesario un tiempo de resolución de más de una hora. En cambio, para realizar medidas en continuo de concentración con actividad variable es aconsejable utilizar el modo rápido. Por lo tanto en este estudio se ha empleado el modo Radon Fast que tiene un tiempo de respuesta rápido. El tiempo de integración seleccionado para las medidas ha sido de 60 minutos, obteniendo un valor de la actividad cada hora.

La edición GEO-RTM 2100 permite medir, además de la concentración de radón y torón, varios parámetros como la temperatura del agua, el pH, la conductividad eléctrica, el potencial redox y la concentración de CO_2 . Para ello cuenta con cuatro sensores externos, cuyas conexiones: CO_2 , COND., REDOX y pH se encuentran en la

parte frontal derecha del dispositivo, como se puede ver en la Figura 8. La temperatura del agua se mide a través de un sensor integrado en el de la conductividad.

Espectrometría gamma

La técnica de espectrometría gamma consiste en la obtención del espectro de las radiaciones gamma emitidas por una muestra. Esta técnica se basa en que la respuesta del detector es proporcional a la energía de los rayos gamma detectados, de forma que se obtiene la distribución energética o espectro en energía.

Algunos de los factores que determinan el espectro son el tipo de detector, la energía de la radiación, el tamaño del detector, el tipo de blindaje y materiales que rodean el detector y otras radiaciones de la muestra.

En este estudio se ha utilizado un detector gamma de centelleo de yoduro sódico con impurezas de talio NaI(Tl). El cristal de NaI(Tl) tiene geometría cilíndrica con dimensiones $Diámetro \times Altura = 3'' \times 3''$ ($1'' = 2.54$ cm) y va unido a un tubo fotomultiplicador, alimentado con una fuente de alta tensión, que se conecta a un amplificador y este a un analizador multicanal. El detector está protegido de la radiación exterior por un blindaje de plomo. En la Figura 11 se muestra un dibujo esquemático del detector con los distintos elementos que le conforman.

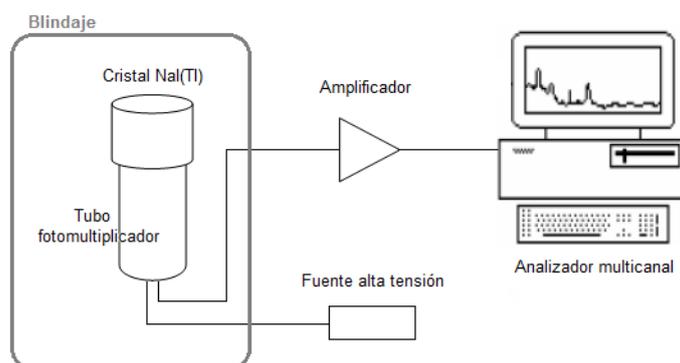


Figura 11: Esquema del detector de centelleo donde se muestran los distintos elementos: el cristal de NaI(Tl) y el tubo fotomultiplicador, ambos en el interior del blindaje, la fuente de alta tensión a la que va conectada el fotomultiplicador, el amplificador y el analizador multicanal.

La muestra radiactiva se coloca encima del detector de forma que la radiación gamma interacciona con el cristal de NaI(Tl) y produce una emisión de luz de baja energía. Ésta es recogida en el fotocátodo del tubo fotomultiplicador, que genera entonces un pulso eléctrico con amplitud proporcional a la energía absorbida en el cristal. A continuación, los pulsos eléctricos son amplificados y finalmente llegan al analizador multicanal que se encarga de clasificarlos según su amplitud. De esta forma se obtiene un espectro que es proporcional a la energía de la radiación incidente que llega al detector.

Para determinar la concentración del ^{222}Rn se utilizan las emisiones de radiación gamma de los isótopos ^{214}Pb y ^{214}Bi . Estos son descendientes de vida corta del radón con el que alcanzan el equilibrio secular al cabo de unas 3 horas, como se muestra en la Figura 3. (Véase apartado 1.1)

En la Figura 12 se muestra un espectro típico obtenido con el detector de centelleo de NaI(Tl) para una muestra con radón. En el espectro se puede ver resaltado en color amarillo un triplete que corresponde a las emisiones gamma del ^{214}Pb y otro fotopico que corresponde a la emisión gamma del ^{214}Bi . Las energías de los fotopicos del triplete de ^{214}Pb son $E_{\gamma 1} = 242 \text{ keV}$, $E_{\gamma 2} = 295 \text{ keV}$ y $E_{\gamma 3} = 352 \text{ keV}$, y la energía del fotopico de ^{214}Bi es $E_{\gamma} = 609 \text{ keV}$.

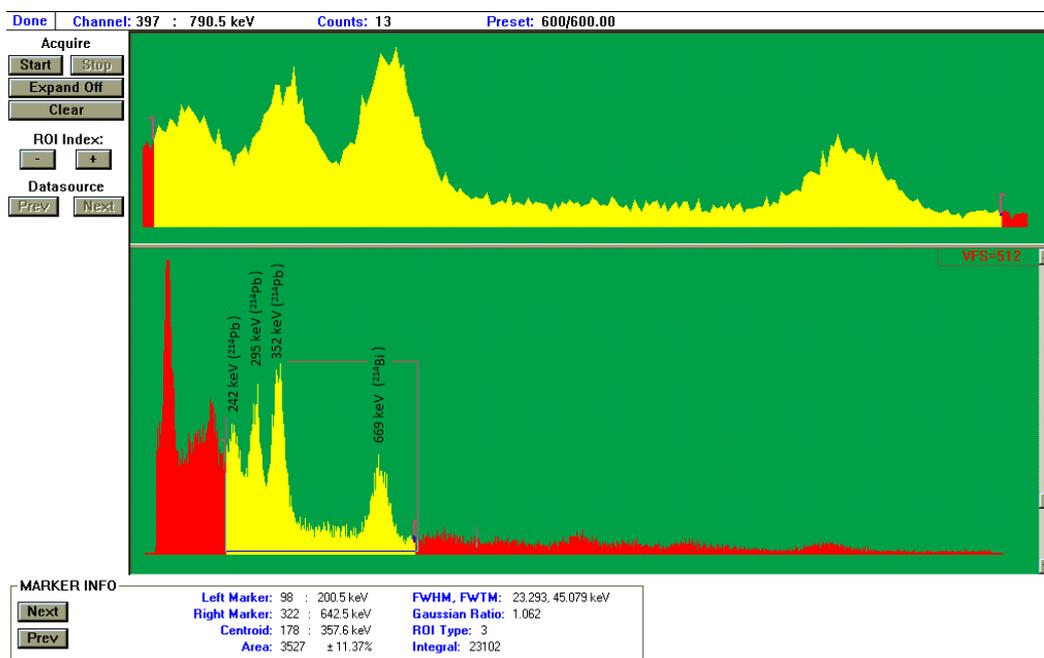


Figura 12: Imagen del espectro obtenido con el detector de centelleo de NaI(Tl) para una muestra con ^{222}Rn . Resaltado en color amarillo se muestra el triplete que corresponde a las emisiones gamma del ^{214}Pb y el fotopico de la emisión gamma del ^{214}Bi .

En la figura 13 se muestra el esquema del decaimiento del ^{214}Pb al ^{214}Bi donde se han señalado con flechas las tres emisiones gamma más probables, que corresponden a las emisiones del triplete.

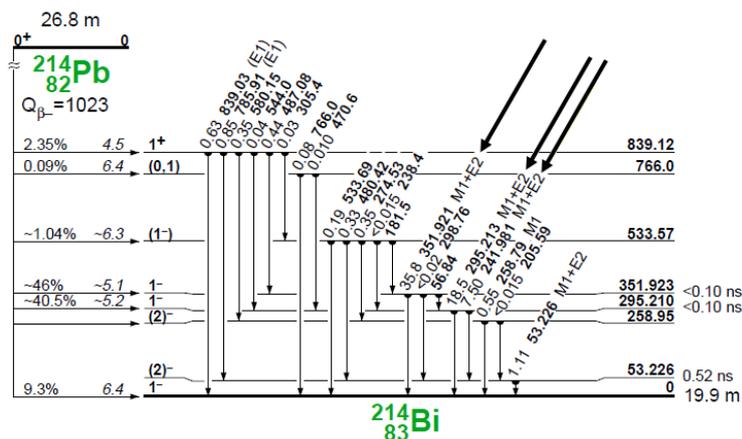


Figura 13: Esquema del decaimiento del ^{214}Pb al ^{214}Bi , donde se muestra la probabilidad de emisión y la energía en keV (en negrita) de cada emisión gamma

Una vez obtenido el espectro de energías de una muestra, se seleccionan las cuentas bajo los fotopicos mencionados como aparece en la Figura 12 resaltado en amarillo, que proporcionan un valor de las cuentas totales.

Hay que tener en cuenta también la contribución del fondo ambiental, por lo que prepara en un recipiente de la misma geometría una muestra con agua destilada y desionizada. Entonces, se realiza una medida del espectro durante el mismo tiempo que para la muestra problema y se obtiene el número de cuentas del fondo.

Finalmente, se calcula el número de cuentas netas como la resta de las cuentas totales menos las cuentas del fondo, y se obtiene un valor para la actividad de la muestra a partir de la eficiencia deducida para una muestra calibrada.

Radon Scout

El dispositivo Radon Scout, fabricado por la compañía SARAD [15], es un instrumento versátil y sencillo que se centra en la detección de radón en el aire aunque también mide la temperatura del aire y la humedad relativa.

En la Figura 14 se muestra una fotografía de un detector Radon Scout.



Figura 14: Imagen del dispositivo Radon Scout.

Este dispositivo no tiene una bomba de aire para atraer el gas por lo que mide la concentración de radón por difusión. En su interior tiene una cámara de medida, similar a la del RTM 2100, donde se encuentra un detector de silicio alimentado con alto voltaje. El sistema de detección también es como el descrito arriba para el RTM 2100, salvo que en este caso solo se tiene una ventana de energía o ROI asignada a la energía del ^{218}Po .

Células de centelleo

Las células de centelleo como las células de Lucas se utilizan para la medida de muestras radón en el ambiente. Una célula de Lucas consiste en un cilindro recto de plexiglás revestido por dentro con sulfuro de cinc activado con plata $\text{ZnS}(\text{Ag})$, en el que se ha hecho el vacío [16].

Para realizar una medida de la concentración de radón con una célula de Lucas es necesario coger una muestra de aire. El aire entra en el cilindro por una válvula situada en la parte superior y es recomendable tomar pequeñas muestras de aire abriendo la válvula lentamente repetidas veces hasta llenar por completo la célula.

Tras esperar al equilibrio entre el radón y sus descendientes emisores alfa de corta duración, se coloca la célula de Lucas sobre un tubo fotomultiplicador en el interior de un recinto hermético, como se muestra en la Figura 15. Las partículas alfa emitidas por el radón y sus productos de desintegración golpean el $\text{ZnS}(\text{Ag})$ en el interior de la célula y este emite pulsos de luz. Estos pulsos son amplificados por el fotomultiplicador y, a continuación, un contador alfa recoge el número de cuentas.

A partir del número de cuentas, conociendo la eficiencia del fotomultiplicador, que se calcula generalmente por muestreo de una concentración de radón conocido, se obtiene la concentración de radón en el aire. La eficiencia del contador alfa empleado en este trabajo es de $2.9 \text{ cpm pCi}^{-1} \text{ l}$, que equivale a $78.3 \text{ cpm Bq}^{-1} \text{ l}$.



Figura 15: Imagen del dispositivo para la medida de las células de Lucas, donde se aprecia el tubo fotomultiplicador, el contador alfa y al fondo varias células de Lucas.

2.3 Montaje experimental

Para realizar las medidas de concentración de radón en agua en continuo con el dispositivo GEO-RTM 2100 se ha utilizado el ‘SARAD water kit’. El montaje experimental se muestra en la Figura 16 y se distingue entre el circuito de aire y el circuito de agua.

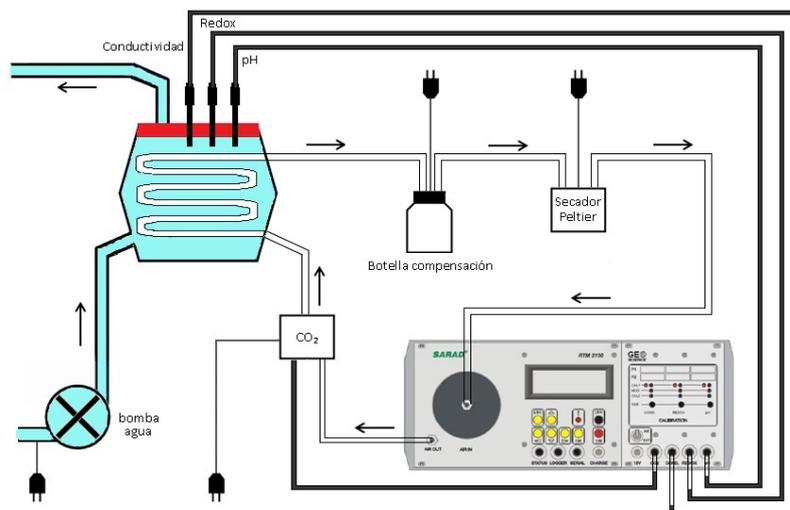


Figura 16: Esquema del montaje experimental utilizado para la medida en de la concentración de radón en agua en continuo mediante el dispositivo GEO-RTM 2100 [17].

El circuito de agua consiste en una bomba que recoge el agua de un cubo y la introduce en un recipiente cerrado de unos 0.5 l. Este recipiente tiene una salida por la que el agua regresa al cubo, de forma que se tiene un circuito cerrado con agua circulando en continuo movimiento.

El circuito de aire comienza en la salida Air Out del dispositivo GEO-RTM 2100, que crea un flujo de aire gracias a su bomba interna, y continúa hasta el recipiente con agua en el que hay un tubo de silicona sumergido. Este tubo de silicona es impermeable al agua pero permite el paso del radón por difusión molecular, por lo que el radón disuelto en el agua pasa al circuito de aire dentro del tubo. Para evitar la entrada de vapor de agua al detector, se colocan a continuación una botella de compensación y un secador Peltier, la botella para condensar el posible vapor de agua en el circuito y el secador para eliminar el vapor no condensado antes. Finalmente, el circuito termina en la entrada Air In del dispositivo como se muestra en la Figura 16.

También se pueden ver las conexiones de los sensores externos, el sensor que mide la concentración de CO₂ se coloca en el circuito de aire, y los sensores para medir la conductividad eléctrica, el pH y el potencial redox se introducen dentro del recipiente con agua.

3 Método experimental y calibración

3.1 Estudios previos a la caracterización de las fuentes

Previamente a caracterizar las fuentes generadoras radón en agua, del modo en que se explica en el apartado 2.1, se han realizado algunas medidas para comprobar la difusión de radón a través de las membranas y tubos de silicona que se utilizan en el estudio.

Primero se ha estudiado la difusión a través de una membrana de silicona, para lo que se ha preparado una vitrina de metacrilato sellada, como la que se muestra en la Figura 17. En el interior de la vitrina se ha colocado un recipiente de cristal cerrado por una membrana de silicona, con una muestra de tierra con ^{226}Ra dentro, y un detector Radon Scout.

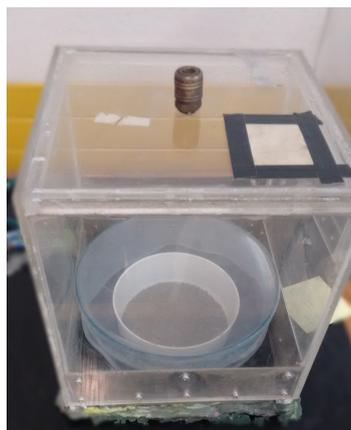


Figura 17: Vitrina de metacrilato con una muestra de tierra con ^{226}Ra en su interior, dentro de un recipiente de cristal sellado por una membrana de silicona.

La muestra de tierra empleada en este caso está registrada como P-15119-SUE-1 y tiene una masa $m = (143.76 \pm 0.02)$ g y una concentración de radio $C_{\text{Ra}-226} = (761 \pm 24)$ kBq kg $^{-1}$.

En la Figura 18 se muestra la correspondiente curva de la concentración de radón en aire dentro de la vitrina medida con el dispositivo Radon Scout.

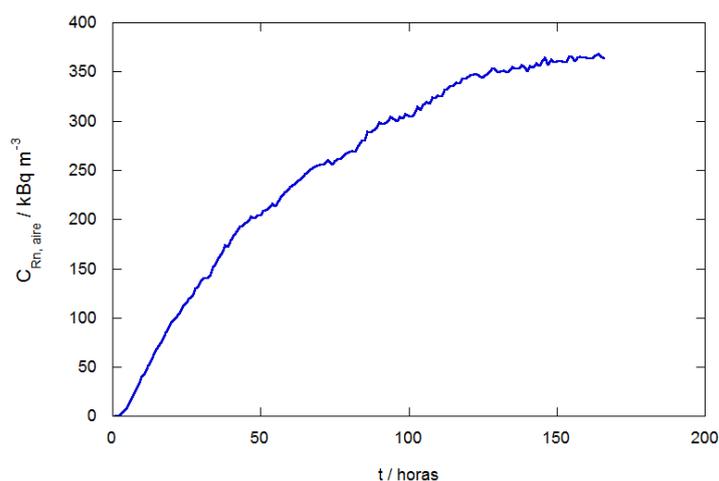


Figura 18: Representación gráfica de la concentración de radón en aire en función del tiempo para la muestra de tierra con ^{226}Ra dentro de la vitrina.

Después se ha estudiado la difusión de radón al aire por un tubo de silicona, para lo que se ha preparado una vitrina de forma similar a lo anterior. En este caso se ha utilizado la fuente de radón PYLON que tiene un flujo continuamente disponible de $1.313 \cdot 10^4$ mBq min^{-1} . Se ha conectado la fuente al tubo de silicona y este se ha colocado en el interior de la vitrina sellada, junto con un detector Alpha E.

En la Figura 19 se muestra la curva de la concentración de radón en aire dentro de la vitrina obtenida con el dispositivo Alpha E, cuyo sistema de detección es como el del Radon Scout.

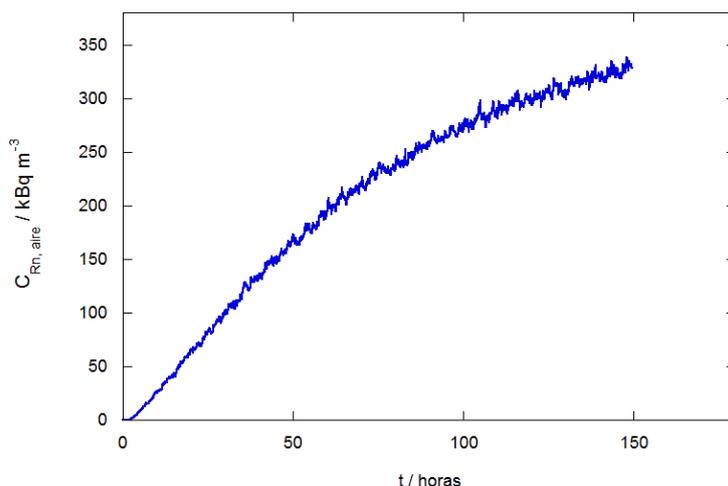


Figura 19: Representación gráfica de la concentración de radón en aire en función del tiempo para la fuente de radón a través del tubo de silicona dentro de la vitrina.

En la Figura 18 se observa que la curva de la concentración de radón en aire alcanza un valor de 363 kBq m^{-3} cuando han transcurrido 165 horas. Por su parte, en la Figura 19 se observa que la curva alcanza un valor de la concentración de radón en aire en el interior de la vitrina de 325 kBq m^{-3} cuando han transcurrido 145 horas.

A partir de las dos medidas realizadas se puede concluir que tanto la membrana de silicona como los tubos del mismo material presentan una transparencia al gas radón.

3.2 Calibración detector NaI(Tl)

Las medidas de concentración de radón en agua realizadas por espectrometría gamma en el detector de NaI(Tl) proporcionan un valor de las cuentas netas, que se obtiene como se explica en el apartado 2.2 ‘Espectrometría gamma’.

Para calcular la equivalencia en Becquerelios por unidad de volumen a partir de las cuentas netas es necesario realizar una calibración. En esta ocasión se ha hecho una calibración utilizando una fuente patrón de radio ^{226}Ra SRM 4967A, procedente del NIST (National Institute of Standards & Technology).

Este material de referencia estándar (SRM) consiste en una solución de una cantidad estandarizada y certificada de ^{226}Ra radiactivo en una matriz adecuadamente estable y homogénea. El valor certificado de la actividad másica del radio-226, con referencia del 01 de septiembre 2003 es:

$$(2483 \pm 30) \text{ Bq g}^{-1}$$

En la Tabla 1 se muestra información adicional sobre la fuente patrón SRM 4967A.

Descripción fuente	Líquido en un ampolla de 5 ml de vidrio de borosilicato termosellada.
Composición solución	1.0 mol l ⁻¹ HCl con 80 μg de BaCl ₂ por gramo de solución
Densidad solución	(1.017 ± 0.002) g ml ⁻¹ a 21 °C
Masa solución	(5.086 ± 0.003) g

Tabla 1: Información certificada de SRM 4967A, proporcionada en el certificado del NIST.

A partir de la fuente patrón se prepara una disolución ‘madre’ añadiendo 250 ml de agua destilada y, a continuación, se preparan otras disoluciones calibradas de menor concentración.

Para la calibración del detector de NaI(Tl) se han preparado cinco disoluciones de distinta concentración, en recipientes de 250 ml con geometría ‘duquesa’, que es la más común empleada en las medidas con este tipo de detector. Estos recipientes se cierran y se sellan con un sellador acrílico para el gas radón, descendiente del radio, no escape del recipiente.

Cuando han transcurrido unos 33 días desde la preparación de las disoluciones, se alcanza el equilibrio secular entre el ^{226}Ra y el ^{222}Rn por lo que sus actividades se igualan. Entonces se realizan varias medidas de $t = 600$ s en el detector de NaI(Tl) para cada una de las disoluciones calibradas y se calcula su concentración en la fecha de medida en equilibrio. En este caso las disoluciones se preparan a fecha de 23/04/2015 y las medidas del equilibrio se hacen el 09/06/2015, habiendo transcurrido 47 días.

En la Tabla 2 se muestran las concentraciones teóricas de las disoluciones patrón en la fecha indicada y el promedio de las cuentas netas obtenidas para cada una de ellas.

$C_{\text{teórica}}/\text{Bq l}^{-1}$	c_{netas}
589	6243 ± 117
252	2724 ± 54
110	1240 ± 26
47	529 ± 11
20	257 ± 6

Tabla 2: Valores experimentales de la concentración teórica de las disoluciones calibradas y las cuentas netas obtenidas con el detector de NaI(Tl) a fecha de 09/06/2015, con su error correspondiente. El error en la concentración teórica es del orden del 5%.

En la Figura 20 se representan los valores experimentales de la Tabla 2.

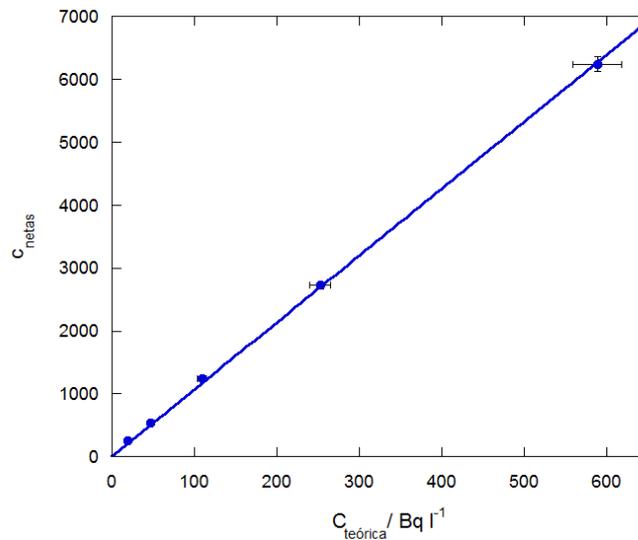


Figura 20: Representación gráfica de las cuentas netas obtenidas en el detector de NaI(Tl) frente a la concentración teórica de las disoluciones calibradas, con sus barras de error correspondientes. El ajuste lineal proporciona la siguiente ecuación $c_{\text{netas}} = (10.66 \pm 0.08)C_{\text{teórica}}$, con un coeficiente de determinación ajustado $R^2 = 0.999$.

El ajuste lineal a estos datos experimentales proporciona un valor para el factor de calibración de radón en agua en el detector de NaI(Tl):

$$C_{\text{Rn,agua}}/c_{\text{netas}} \approx 0.094 \text{ Bq l}^{-1} \quad (14)$$

El error estimado para la concentración de radón en agua calculada a partir del factor de calibración, que se obtiene tras aplicar un factor de cobertura, es del 10%.

3.3 Factor de calibración RTM 2100

Las medidas de la concentración de radón que proporciona el dispositivo GEO-RTM 2100 vienen dadas en Bq m^{-3} ya que la concentración se mide en el circuito de aire, como se ha explicado anteriormente. Para obtener la concentración de radón

en el agua expresada en Bq l^{-1} se ha realizado una comparación de las medidas del RTM 2100 con otras medidas realizadas por espectrometría gamma en el detector de NaI(Tl) . De este modo se ha encontrado un factor de calibración que sirve para caracterizar la difusión del tubo de silicona empleado en el circuito del montaje experimental.

En la siguiente Tabla se muestran los valores de la concentración de radón obtenidos con el dispositivo GEO-RTM 2100 y por espectrometría gamma en el detector de NaI(Tl) , que se han utilizado para el cálculo del factor de calibración.

Fecha	$C_{\text{RTM}} / \text{Bq m}^{-3}$	$C_{\gamma} / \text{Bq l}^{-1}$
15/04/2015	68782	211 ± 21
16/04/2015	76490	248 ± 25
17/04/2015	87562	283 ± 28
20/04/2015	127289	405 ± 35
21/04/2015	115000	350 ± 41

Tabla 3: Valores experimentales de la concentración de radón obtenidos con el dispositivo GEO-RTM 2100 y mediante espectrometría gamma para las fechas indicadas. La incertidumbre de las medidas realizadas con el dispositivo RTM 2100 es del 3%.

En la Figura 21 se muestra la representación gráfica de los valores experimentales de la Tabla 3.

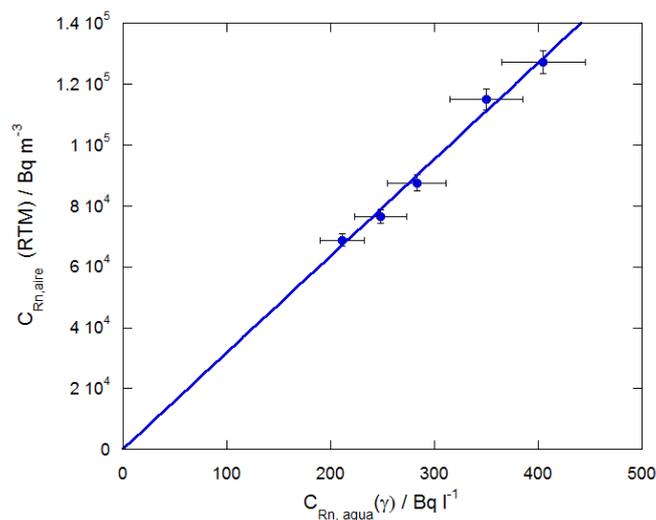


Figura 21: Representación de la concentración de radón obtenida con el dispositivo GEO-RTM 2100 en función de la concentración de radón obtenida por espectrometría gamma. Se ha realizado un ajuste lineal por mínimos cuadrados, obteniendo la siguiente ecuación $C_{\text{RTM}} = (318 \pm 4)C_{\gamma}$. El coeficiente de determinación ajustado en este caso es $R^2 = 0.988$.

Se ha realizado un ajuste lineal a los datos experimentales, obteniendo el siguiente valor para el factor de calibración:

$$f = \frac{C_{\text{RTM}}}{C_{\gamma}} = (318 \pm 4) \frac{\text{Bq m}^{-3}}{\text{Bq l}^{-1}} \quad (15)$$

La solubilidad del radón en agua depende de la temperatura, como se vio en el apartado 1.3, por lo tanto el factor de calibración depende de la temperatura del agua. El valor obtenido en este caso se puede aplicar en un rango de temperaturas aproximado de 20 a 23°C, que es el intervalo de temperatura del agua en el que se han realizado las medidas que se presentan en la Tabla 3.

3.4 Test adicional sistema Radon Scout-membrana silicona para la medida de radón en agua

En este trabajo se ha intentado desarrollar un sistema de medida de radón en agua alternativo al dispositivo GEO-RTM 2100, que consiste en un dispositivo Radon Scout en el interior de un recipiente cerrado con una membrana de silicona, como se muestra en la Figura 22.

Este sistema permite sumergir el dispositivo de medida de radón en aire Radon Scout en el volumen de agua que se quiere estudiar sin que el detector se estropee, mientras que el radón disuelto en el agua puede atravesar la membrana de silicona y entrar en el recipiente de cristal donde el detector mide su concentración.

Las medidas realizadas con esta técnica son, por lo tanto, medidas de la concentración de radón en el aire del interior del recipiente de cristal.

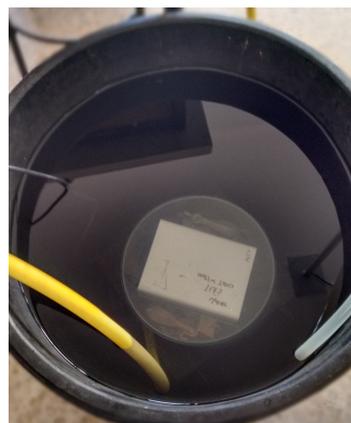


Figura 22: Sistema de medida Radon Scout-membrana silicona sumergido en un cubo con agua problema.

Para hallar una equivalencia con la concentración de radón disuelto en el agua se pueden comparar las medidas obtenidas por el detector Radon Scout con medidas realizadas por espectrometría gamma, al igual que con el factor de calibración del RTM 2100. Sin embargo, en este caso hay que tener en cuenta que el dispositivo Radon Scout no tiene una bomba de aire interna, sino que mide por difusión.

El radón disuelto en el agua entra en el recipiente de cristal a través de la membrana de silicona y entonces el detector comienza a medir por difusión. La concentración de radón en aire medida crece progresivamente al principio, y luego se estabiliza transcurrido un tiempo.

Para hallar el factor de conversión entre concentración de radón en aire y agua, se pueden usar los valores experimentales del detector Radon Scout una vez que la medida se ha estabilizado.

En la Tabla 4 se muestran los valores de la concentración de radón utilizados para calcular el factor de conversión.

Fecha	$C_{\text{Scout}} / \text{Bq m}^{-3}$	$C_{\gamma} / \text{Bq l}^{-1}$
26/05/2015	739024	370 ± 37
28/05/2015	726376	354 ± 35
29/05/2015	710876	328 ± 33
01/06/2015	755234	395 ± 40
08/06/2015	770925	438 ± 44

Tabla 4: Valores experimentales de la concentración de radón obtenidos con el dispositivo Radon Scout y mediante espectrometría gamma para las fechas indicadas. La incertidumbre de las medidas realizadas con el dispositivo Radon Scout es del 3%.

El test de este sistema Radon Scout-membrana silicona se ha realizado como experiencia adicional y durante la medidas la concentración de radón en el agua sometida a estudio no ha variado mucho, de modo que los puntos que se presentan en la Tabla 4 corresponden a un rango de medida reducido.

En la Figura 23 se muestra la representación gráfica de los valores experimentales de la Tabla.

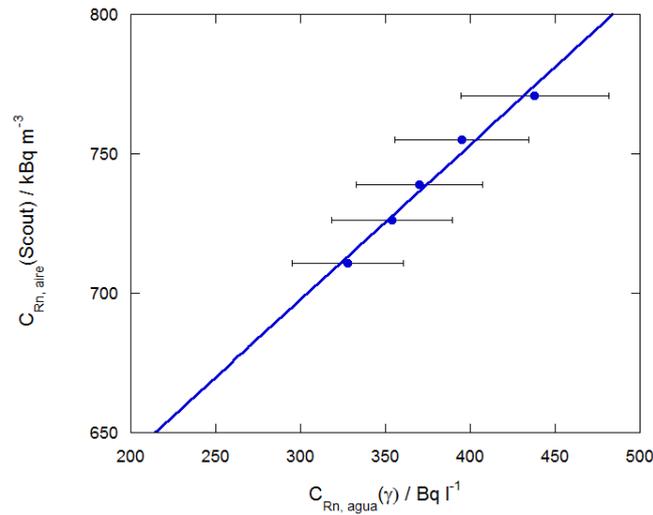


Figura 23: Representación de la concentración de radón en aire obtenida con el dispositivo Radon Scout en función de la concentración de radón obtenida por espectrometría gamma. Se ha realizado un ajuste lineal por mínimos cuadrados, obteniendo la siguiente ecuación $C_{\text{Scout}} = (531 \pm 18) + (0.56 \pm 0.05)C_{\gamma}$. El coeficiente de determinación ajustado en este caso es $R^2 = 0.978$.

El ajuste lineal a los datos experimentales de la gráfica proporciona la siguiente ecuación de la recta:

$$C_{\text{Scout}} = (531 \pm 18) + (0.56 \pm 0.05) \frac{\text{kBq m}^{-3}}{\text{Bq l}^{-1}} C_{\gamma} \quad (16)$$

Esta ecuación permite la conversión de la concentración de radón en aire medida por el detector Radon Scout en concentración de radón disuelto en agua. Pero solo es válida para las medidas del dispositivo Radon Scout una vez que se ha alcanzado una concentración estable. El tiempo necesario para alcanzar la estabilidad en la medida de la concentración con el Radon Scout, estimado a partir de las medidas efectuadas, es de aproximadamente 4 días.

3.5 Modelización comportamiento ^{222}Rn en agua

La concentración de ^{222}Rn en agua observada para las distintas fuentes tiene una tendencia de aumento hasta un máximo estable. Para explicar este comportamiento de la concentración de radón se puede utilizar un modelo denominado ‘Modelo de compartimento cerrado’ que se describe a continuación [17].

Modelo Compartimento Cerrado (MCC)

Se tiene un volumen de agua V con una concentración inicial de radón C_0 , sin ningún aporte de agua exterior, en el que se encuentra una fuente de ^{226}Ra que exhala ^{222}Rn según una constante E a través de su superficie S . La concentración de radón en este sistema disminuye según la ley de desintegración radiactiva y también debido al intercambio de radón disuelto en agua al aire.

En la Figura 24 se muestra un esquema de la dinámica de la concentración de radón según este modelo.

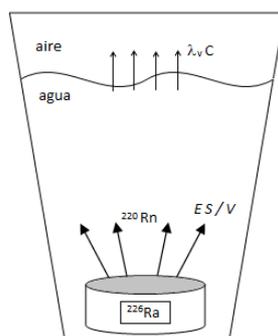


Figura 24: Esquema de la dinámica de la concentración de radón según el modelo MCC.

Por lo tanto, se puede plantear la variación de la concentración de radón en función del tiempo como:

$$\frac{dC}{dt} = \frac{ES}{V} - \lambda C \quad (17)$$

donde la fracción ES/V es la tasa de emisión de radón, con unidades de $\text{Bq l}^{-1}\text{h}^{-1}$, y λ es la constante de disminución de radón que se obtiene como $\lambda = \lambda_{\text{Rn-222}} + \lambda_v$, siendo $\lambda_{\text{Rn-222}}$ la constante de desintegración radiactiva del ^{222}Rn y λ_v la constante de ventilación, que refleja el intercambio de radón en la interfase agua-aire por unidad de tiempo.

Resolviendo la ecuación diferencial (17), se encuentra una expresión para la concentración de radón en agua en función del tiempo según este modelo:

$$C(t) = C_0 e^{-\lambda t} + \frac{\phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (18)$$

donde ϕ es la tasa de emisión de radón ES/V .

Aplicando ahora la condición de máximo a la expresión anterior se puede obtener la concentración máxima a la que tiende el radón según el modelo MCC como:

$$\frac{dC}{dt} = 0 \implies C_{\max} = \frac{\phi}{\lambda} \quad (19)$$

Modelo Compartimento Abierto (MCA)

En el caso de tener una situación como la anterior, pero con un aporte externo de agua con distinta concentración de radón al volumen de agua principal, el modelo de comportamiento es distinto y se conoce como Modelo de Compartimento Abierto (MCA) [17].

Se pueden suponer las mismas condiciones que antes añadiendo un término de intercambio. Por tanto la variación de la concentración de radón se puede expresar con la siguiente ecuación:

$$\frac{dC}{dt} = \phi - \lambda C - \lambda_I (C - C') \quad (20)$$

donde λ_I es la constante de intercambio de volumen de agua por unidad de tiempo y C' es la concentración de radón del agua que se añade al volumen principal.

Si se resuelve la ecuación diferencial (20) se obtiene la siguiente expresión para la concentración de radón en función del tiempo:

$$C(t) = C_1 e^{-\lambda' t} + \frac{d}{\lambda'} (1 - e^{-\lambda' t}) \quad (21)$$

donde $d = \phi + \lambda_I C'$ con unidades de $\text{Bq l}^{-1}\text{h}^{-1}$ y $\lambda' = \lambda + \lambda_I$.

4 Resultados y análisis

4.1 Caracterización de las fuentes

Para estudiar la concentración de radón en agua en continuo se han desarrollado varias fuentes, siguiendo los modelos explicados en el apartado 2.1. A continuación se presenta la caracterización realizada para tres fuentes de radón en el agua.

Fuente 1

En primer lugar se ha preparado una fuente utilizando la muestra de tierra P-12161-SUE-1 con masa $m = (101.00 \pm 0.02)$ g y una concentración de radio $C_{\text{Ra-226}} = (650 \pm 18)$ kBq kg⁻¹. La muestra de tierra con ²²⁶Ra se ha sumergido, dentro de un recipiente de cristal cerrado con una membrana de silicona, en un volumen de aproximadamente 50 l de agua del grifo dentro de un cubo como el de la Figura 6 (izquierda).

Se ha realizado un seguimiento diario mediante espectrometría gamma, con medidas de $t = 600$ s, de la concentración de radón en el agua superficial del cubo, que ha permanecido cerrado excepto para coger las muestras. Además, a partir del día 15 del seguimiento se han realizado medidas de la concentración de radón en agua a dos alturas en el interior del cubo, para muestras de agua superficial y de agua profunda.

En la Figura 25 se muestra la evolución de la concentración de radón en agua en el interior del cubo.

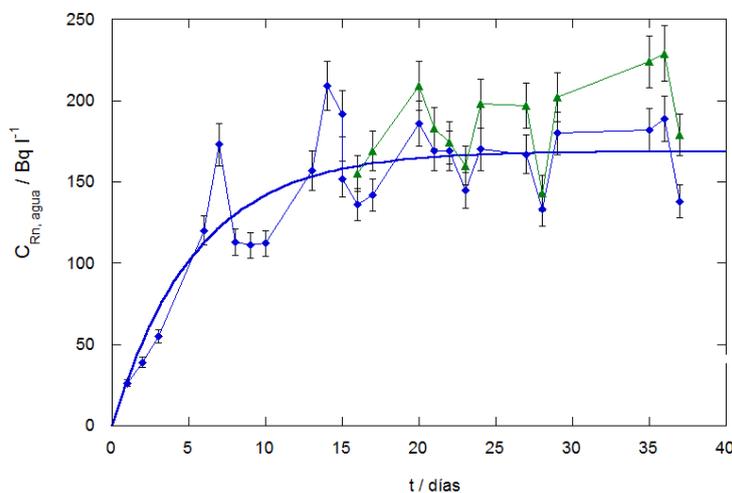


Figura 25: Representación gráfica de la concentración de radón en agua en función del tiempo dentro del cubo, con sus barras de error correspondientes. La concentración en el agua se ha medido para dos alturas, los rombos (azul) representan las medidas del agua superficial y los triángulos (verde) las medidas del agua profunda.

Las medidas de la concentración de radón en agua siguen una tendencia de crecimiento. Comparando las medidas realizadas para el agua superficial y el agua

profunda, se observa que la concentración de radón en el agua profunda es siempre mayor que en la superficie. Esto puede deberse a que el agua del cubo en este caso permanece estática y la fuente generadora de radón se encuentra en el fondo del cubo, de modo que el radón se acumula cerca de la fuente dando lugar a una concentración de radón más alta en el fondo del cubo.

Se ha realizado un ajuste a la curva de la concentración de radón en agua superficial según el modelo MCC, obteniendo un coeficiente de determinación $R^2 = 0.742$. A partir de este ajuste se ha obtenido un valor para la concentración máxima en el agua superficial $C_{\max} = (168 \pm 3) \text{ Bq l}^{-1}$ que, como se observa en la Figura 25, se alcanza cuando han pasado 35 días. Del ajuste al modelo se ha obtenido también un valor para la tasa de emisión de radón en el agua que es $\phi = (1.3 \pm 0.3) \text{ Bq l}^{-1}\text{h}^{-1}$.

En el caso de esta ‘fuente 1’ también se han hecho medidas de la concentración de radón en aire utilizando células de Lucas, ya que al permanecer cerrado el cubo, el radón se acumula en el volumen de aire entre el agua y la tapa. Estas medidas no son muy precisas porque en ellas influye la forma de recoger las muestras del aire con las células de Lucas.

Fuente 2

Se ha desarrollado otra fuente similar a la ‘fuente 1’ con el mismo volumen de agua, unos 50 l, pero esta vez con dos muestras de tierra en lugar de una. Las muestras de tierra son la P-12161-SUE-1 que había inicialmente, con $m = (101.00 \pm 0.02) \text{ g}$ y $C_{\text{Ra-226}} = (650 \pm 18) \text{ kBq kg}^{-1}$, y la muestra P-15119-SUE-1 que tiene una masa $m = (143.76 \pm 0.02) \text{ g}$ y una concentración de radio $C_{\text{Ra-226}} = (761 \pm 24) \text{ kBq kg}^{-1}$.

En la Figura 26 se muestra el seguimiento de la concentración de radón en agua medida en el detector de NaI(Tl) por espectrometría gamma.

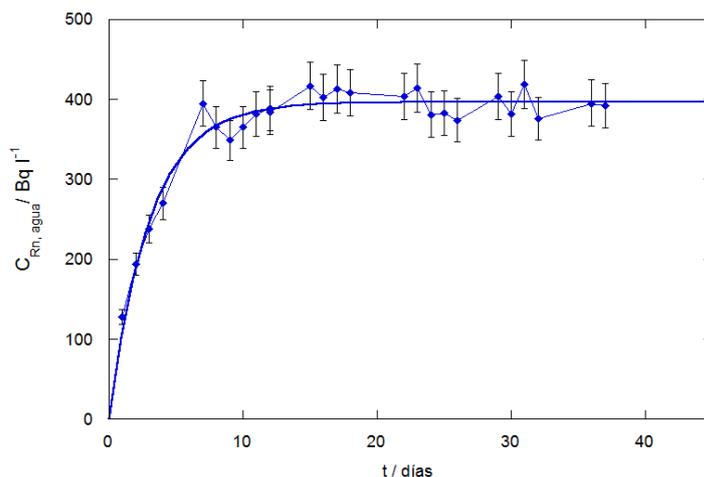


Figura 26: Representación gráfica de la concentración de radón en agua en función del tiempo, con sus barras de error correspondientes. La curva azul corresponde al ajuste experimental al modelo MCC.

En este caso no se han hecho medidas a distintas profundidades dentro del cubo porque el agua ha estado en continuo movimiento, ya que se han realizado simultáneamente medidas en continuo con el dispositivo GEO-RTM 2100 que utiliza una bomba de agua, de forma que la concentración de radón es más o menos homogénea en todo el volumen de agua.

Se ha realizado de nuevo un ajuste de la concentración de radón en agua según el modelo MCC, para el que se ha obtenido un coeficiente de determinación ajustado $R^2 = 0.948$. El valor obtenido para la concentración máxima en este caso es $C_{\max} = (396 \pm 4) \text{ Bq l}^{-1}$, que se alcanza cuando han transcurrido algo más de 15 días, una vez que la concentración es estable. La tasa de radón en el agua obtenida a partir del ajuste es $\phi = (5.3 \pm 0.4) \text{ Bq l}^{-1}\text{h}^{-1}$, bastante mayor que para la otra fuente.

Fuente 3

Se ha desarrollado una tercera fuente, en este caso como la que se muestra en la Figura 7 (véase apartado 2.1). Dentro de la caja sellada se han colocado dos muestras, una es una piedra registrada como P-15008-OTR-1 con masa $m = (63.74 \pm 0.02) \text{ g}$ y una concentración $C_{\text{Ra-226}} = (2000 \pm 455) \text{ kBq kg}^{-1}$, y la otra es una muestra de tierra con masa $m = (63.6 \pm 0.02) \text{ g}$ y concentración $C_{\text{Ra-226}} = (548 \pm 18) \text{ kBq kg}^{-1}$. Además se ha colocado en serie en el circuito la fuente de radón Pylon RN-1025 con un flujo disponible de $1.313 \cdot 10^4 \text{ mBq min}^{-1}$. El flujo de aire proporcionado por la bomba ha sido de 0.1 l min^{-1} intermitente, y el volumen de agua utilizado para sumergir el tubo de silicona ha sido de aproximadamente 18 l agua.

En la Figura 27 se muestra la evolución de la concentración de radón en agua con el tiempo, medida por espectrometría gamma con medidas de $t = 600 \text{ s}$, únicamente tomando muestras de agua superficial.

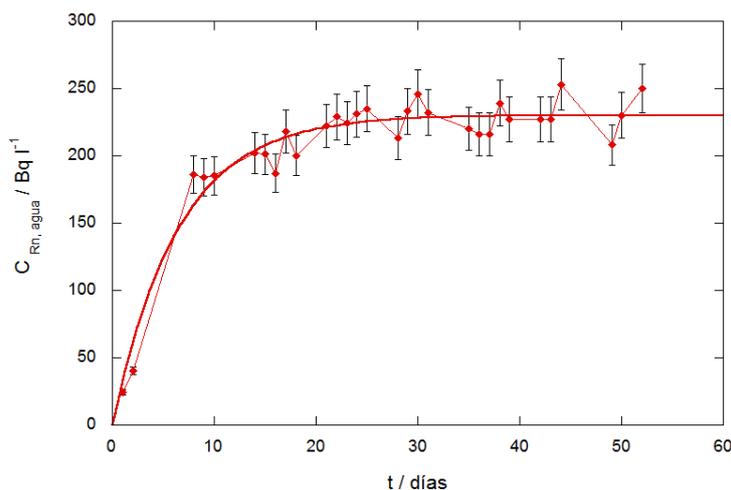


Figura 27: Representación gráfica de la concentración de radón en agua en función del tiempo, con sus barras de error correspondientes. La curva roja corresponde al ajuste experimental al modelo MCC.

Además se ha realizado un ajuste a la curva de la concentración de radón en agua según el modelo MCC, para el que se ha obtenido un coeficiente de determinación $R^2 = 0.937$. A partir de este ajuste se ha obtenido un valor para la concentración máxima $C_{\max} = (230 \pm 3) \text{ Bq l}^{-1}$ que se alcanza una vez que la concentración se estabiliza pasados los 25 días. La tasa de emisión de radón en el agua hallada para la fuente es $\phi = (1.5 \pm 0.2) \text{ Bq l}^{-1}\text{h}^{-1}$, menor que para las dos fuentes anteriores.

4.2 Control medidas de radón en agua en continuo

A continuación se muestran todas las medidas de la monitorización continua realizada con el dispositivo GEO-RTM 2100 a lo largo del periodo en que se ha desarrollado el trabajo, de marzo hasta junio. La concentración de radón en el agua se ha modificado a voluntad, midiendo el agua de distintas fuentes y simulando etapas de recarga y vaciado de acuíferos para algunas fuentes, añadiendo y sustrayendo agua de las fuentes.

En la Figura 28 se muestran todas las series temporales de la concentración de radón en agua obtenidas, una vez aplicado el factor de calibración del RTM 2100. También se muestran las variaciones de la temperatura ambiente y del agua correspondientes.

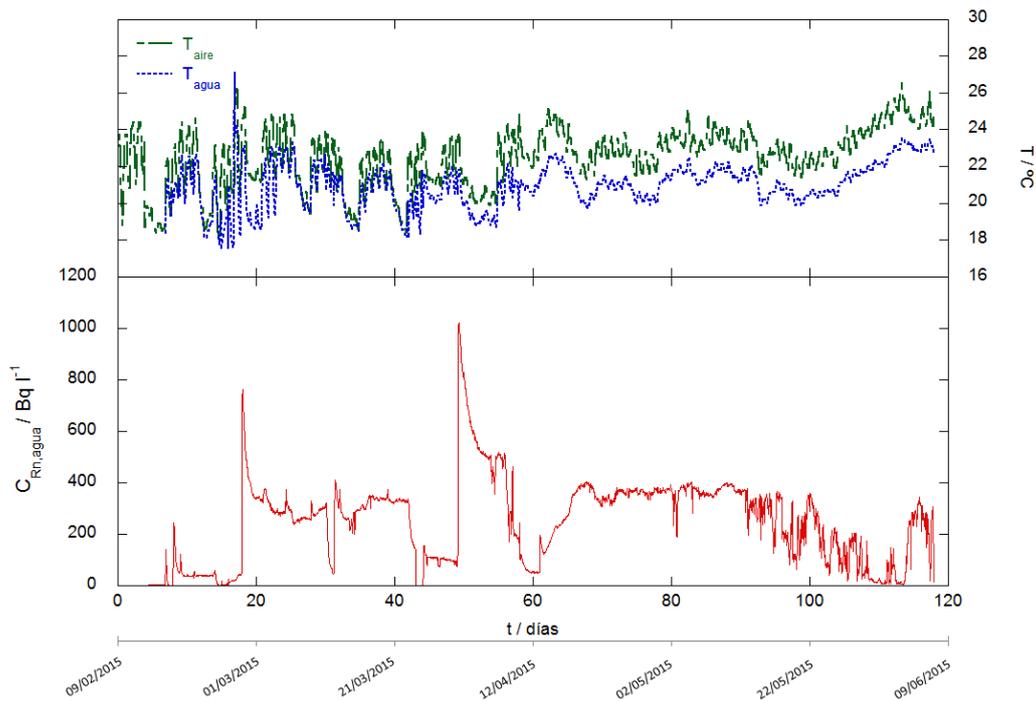


Figura 28: Representación gráfica de la concentración de radón en agua medida con el RTM 2100, con una incertidumbre del 3 %, la temperatura ambiente y la temperatura del agua en función del tiempo en días. Abajo se indican las fechas de realización de las medidas.

Seguidamente se presenta el análisis de dos intervalos de medida de la Figura 28.

En la Figura 29 se representa ampliado el tramo de la gráfica anterior correspondiente a las fechas del 27/02 al 09/03. La fuente generadora de radón en agua utilizada en este intervalo de medida contiene aproximadamente 17 l agua y la muestra de tierra P-15119-SUE-1 con $m = (143.76 \pm 0.02)$ g y concentración $C_{\text{Ra-226}} = (761 \pm 24)$ kBq kg⁻¹.

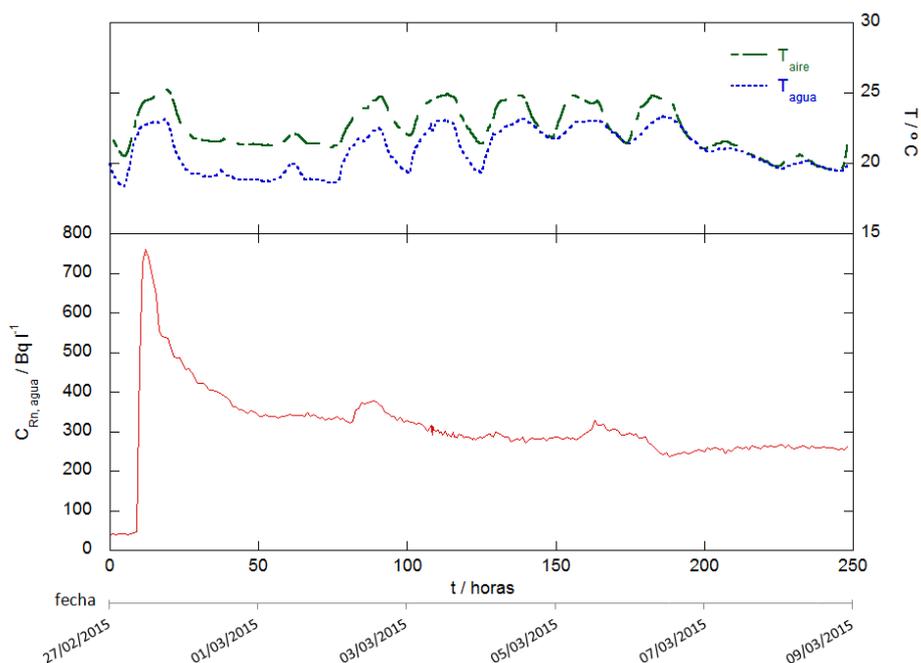


Figura 29: Representación gráfica de la concentración de radón en agua, con una incertidumbre del 3%, la temperatura ambiente y la temperatura del agua en función del tiempo en horas. Abajo se indica la correspondencia del tiempo con la fecha de realización de las medidas.

Análisis concentración de Rn-222 en agua

En la figura anterior se observa una tendencia de la concentración de radón en agua que crece muy rápido al principio y luego decae lentamente hasta estabilizarse. El rápido aumento de la concentración se explica porque cuando se pone a medir el dispositivo la fuente ya tiene una alta concentración de radón en agua. El descenso que le sigue se debe a un aporte externo de 6 l de agua del grifo sin concentración inicial de radón, simulando la posible recarga del ‘acuífero’ con agua superficial o agua de lluvia sin concentración de radón inicial.

Haciendo una estimación de la concentración de radón que debería alcanzar el agua a partir del volumen de agua intercambiado, se obtiene que la concentración debería llegar hasta unos 560 Bq l⁻¹, sin embargo en la gráfica se observa que desciende hasta 340 Bq l⁻¹. La posible explicación para este descenso de la concentración en el agua son las pérdidas que se producen en el circuito de medida junto con las pérdidas de radón disuelto en agua por desorción al aire, ya que el recipiente que contiene la fuente permanece abierto en el periodo de medida.

Análisis condiciones ambientales

En cuanto a la variación de la temperatura, se aprecia una tendencia periódica que corresponde con un aumento hasta llegar a un máximo durante el día y un descenso hasta un mínimo durante la noche. El máximo de la temperatura ambiente se mantiene en unos 24.7°C y el mínimo sobre los 21°C . La temperatura del agua permanece por debajo de la temperatura ambiente y tiene un comportamiento periódico similar, con un máximo durante el día de aproximadamente 23°C y un mínimo por la noche.

Entre las fechas 28/02 y 02/03 se observa que la temperatura disminuye y muestra unos periodos con amplitud mucho menor, al igual que ocurre en la última parte de la gráfica, a partir del 07/02. Este comportamiento se explica porque las medidas se realizan en febrero y durante la semana se enciende la calefacción en las instalaciones, mientras que el fin de semana el laboratorio permanece cerrado y con la calefacción apagada.

En la Figura 30 se muestra ampliada la gráfica de la Figura 28 para las fechas del 13/04 al 04/05. Durante este intervalo de tiempo el agua estudiada corresponde a la 'fuente 2' descrita en la caracterización, que tiene 50 l de agua y las muestras de tierra P-12161-SUE-1 y P-15119-SUE-1.

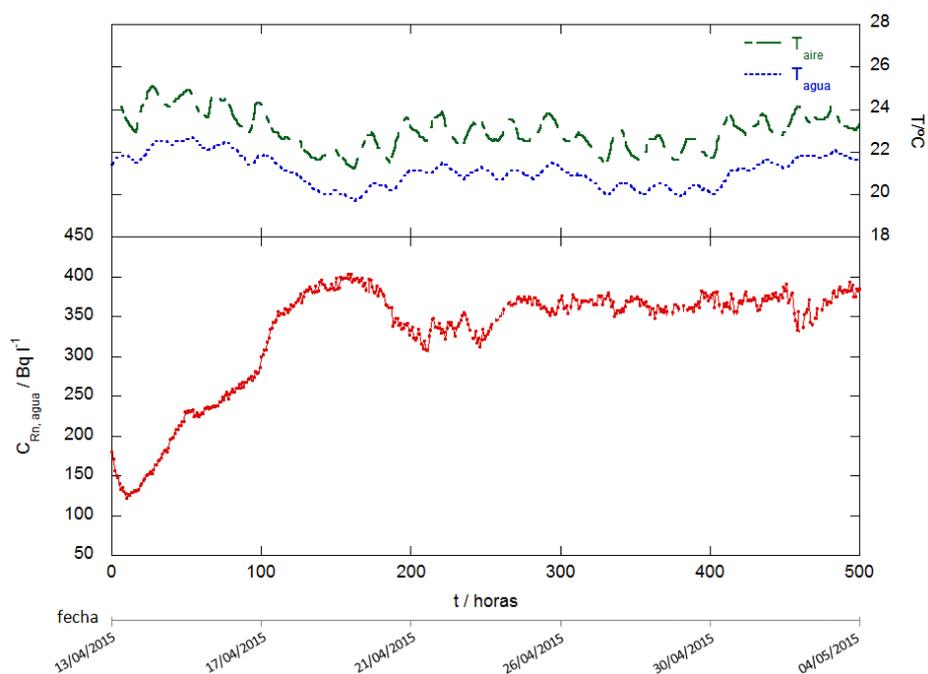


Figura 30: Representación gráfica de la concentración de radón en agua, con una incertidumbre del 3%, la temperatura ambiente y la temperatura del agua en función del tiempo en horas. Abajo se indica la correspondencia del tiempo con la fecha de realización de las medidas.

Análisis concentración de Rn-222 en agua

En la Figura 30 se observa un crecimiento progresivo de la concentración que parte desde un valor de 130 Bq l^{-1} . La medida comienza tras colocar la muestra

P-12119-SUE-1 en el interior del recipiente con agua, que ya tenía dentro la otra muestra P-12161-SUE-1. Por tanto, cuando se empieza a medir el agua presenta una concentración inicial generada por la primera muestra de tierra con ^{226}Ra .

La concentración de radón en agua aumenta hasta llegar a un máximo aproximado de 400 Bq l^{-1} , a medida que las muestras de tierra generan ^{222}Rn que se disuelve en el agua. Tras el máximo se aprecia un pequeño descenso y después la concentración de radón vuelve a estabilizarse.

En este caso lo esperado sería que la curva de la concentración de radón en agua aumentara hasta llegar al equilibrio y entonces permanecer estable. La disminución de la concentración de radón que se observa puede estar relacionada con las pérdidas en el circuito y pérdidas por desorción mencionadas antes.

Análisis condiciones ambientales

En lo referente a las variaciones de la temperatura, tanto la temperatura ambiente como la del agua presentan el comportamiento periódico esperado, con temperatura máxima durante el día y mínima por la noche. En esta ocasión las medidas corresponden a los meses de abril y mayo, por lo que no hay variaciones significativas de la temperatura en los días del fin de semana como ocurría en las medidas de febrero.

Respecto a la temperatura del agua, se encuentra en todo momento 2°C por debajo de la temperatura ambiente y aparentemente no presenta ninguna relación con la concentración de radón en agua.

4.3 Medidas sistema Radon Scout-membrana silicona

Las medidas de concentración de radón en agua realizadas con el sistema formado por el dispositivo Radon Scout dentro de un recipiente cerrado con una membrana de silicona, se han llevado a cabo para la ‘fuente 2’ mencionada en el apartado de ‘Caracterización de las fuentes’.

A continuación, en la Figuras 31 y 32, se muestran varias de las medidas obtenidas tras haber aplicado el factor de conversión obtenido para este sistema, que como se mencionó antes sólo es válido cuando la medida de la concentración alcanza el equilibrio.

En la Figura 31 se observa el crecimiento de la concentración de radón en agua, que llega hasta un máximo de 500 Bq l^{-1} cuando han transcurrido 120 horas y luego desciende progresivamente. La línea de guiones dibujada en la gráfica representa la tendencia de la concentración de radón que cabría esperar. Sin embargo, la medida mostrada en la gráfica presenta una disminución de la concentración de hasta 180 Bq l^{-1} en el tramo final. Este descenso aún no se sabe explicar, debido a las pocas medidas realizadas con este sistema Radon Scout-membrana silicona para la medida de radón en agua.

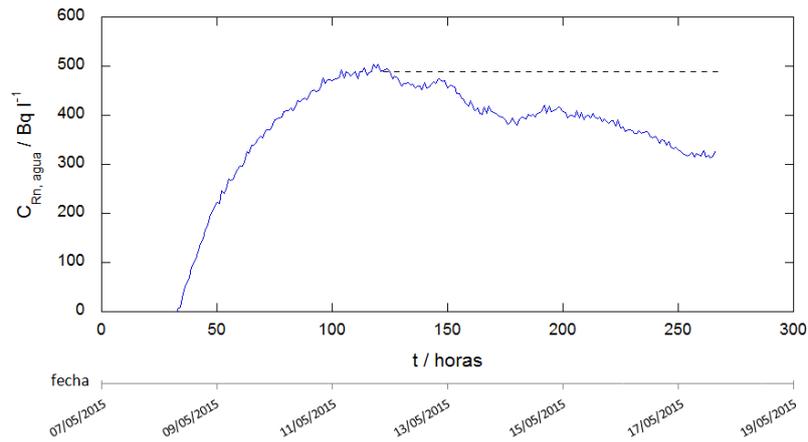


Figura 31: Representación gráfica de la concentración de radón en agua en el interior del cubo en función del tiempo en horas. Abajo se indica la correspondencia del tiempo con la fecha en que se han efectuado las medidas.

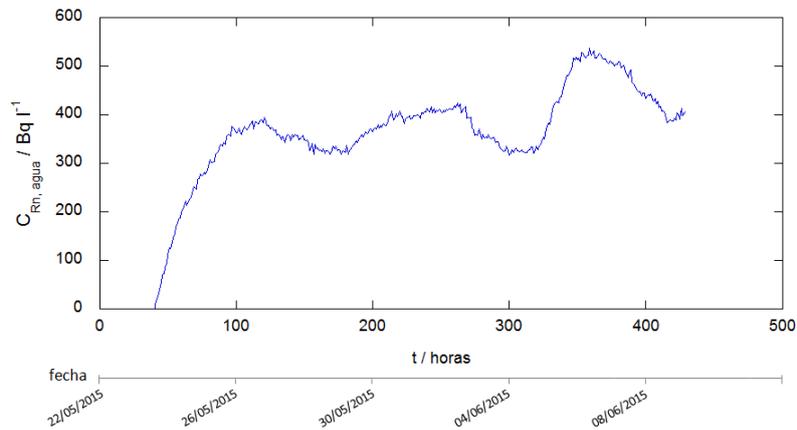


Figura 32: Representación gráfica de la concentración de radón en agua en el interior del cubo en función del tiempo en horas. Abajo se indica la correspondencia del tiempo con la fecha en que se han efectuado las medidas.

En la Figura 32 se observa como la curva de la concentración de radón en agua llega a un valor máximo cuando han transcurrido 120 horas de medida, al igual que ocurría en la medida anterior. Después de este valor máximo se aprecian varias disminuciones e incrementos en la concentración de radón, algunos provocados al simular la recarga y descarga del ‘acuífero’ añadiendo y sustrayendo agua del volumen principal en el recipiente sometido a estudio, y otros que no se saben explicar.

El primer descenso de la concentración de radón el día 27/05 se produce como respuesta al aporte de 12 l de agua sin concentración inicial al volumen total, simulando así una posible recarga externa en el ‘acuífero’ sometido a estudio. Algunos días después, el 4/06 se observa un aumento de la concentración de radón que se explica porque se retiran 10 l del volumen total de agua. Sin embargo, el incremento que se produce el día 30/05 no concuerda con lo esperado.

Este sistema formado por el dispositivo Radon Scout dentro de un recipiente cerrado por una membrana de silicona se propone como una idea que se puede aplicar en un futuro a estudios de campo, pudiendo obtener con este método medidas de la concentración de radón en agua en continuo en un acuífero real en periodos de 2 meses, que es la duración de la batería del equipo. Por lo tanto es interesante profundizar en el estudio de este sistema, realizando experiencias más largas que permitan dar una explicación a los resultados de las medidas obtenidas.

4.4 Medidas parámetros físico químicos

Apenas se han podido realizar medidas con los sensores externos del dispositivo GEO-RTM 2100. Al comienzo del trabajo se realizó un test de calibración de los mismos y se vió que algunos fallaban, por lo que han estado en reparación fuera de funcionamiento durante bastante tiempo.

En la Figura 33 se muestran algunas medidas realizadas con los sensores de medida del pH y el potencial redox, que corresponden a la serie temporal obtenida entre el 22/05 y el 09/06. Se representa también la variación de la concentración de radón en agua correspondiente, medida con el GEO-RTM 2100,

En la gráfica se observa que el pH del agua estudiada tiene al inicio de las medidas un valor de 7.70 que aumenta hasta 7.75, para luego descender progresivamente hasta llegar a un valor $\text{pH}=7.63$. El potencial redox al principio se encuentra entorno al valor de 0, luego aumenta lentamente hasta llegar a unos 8 mV para después continuar con un descenso lento pasando de nuevo por el 0 llega hasta un valor negativo de -30 mV.

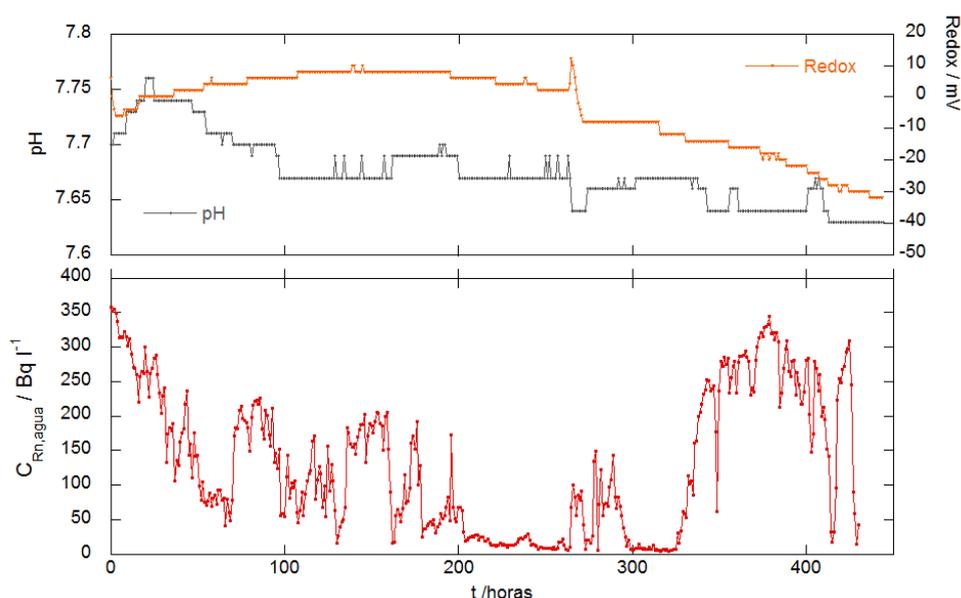


Figura 33: Representación gráfica del pH, el potencial redox y la concentración de radón en agua (medida con el dispositivo GEO-RTM 2100) en función del tiempo en horas.

En relación con las medidas de la concentración de radón en el agua, a primera vista no se observa ninguna relación entre los parámetros medidos con la concentración de radón en el agua, pero no se puede comentar gran cosa ya que las medidas de estos parámetros no han sido continuadas. Se deja abierto un posible estudio de correlación de estos parámetros en el futuro, para medidas en continuo prolongadas en el tiempo.

4.5 Ajuste modelos MCC y MCA

Para comprobar los modelos de comportamiento de la concentración de radón en agua MCC y MCA planteados se han realizado ajustes a los datos experimentales.

El Modelo de Compartimento Cerrado se propone para explicar el aumento de la concentración de radón en agua cuando se tiene un recipiente cerrado sin aporte de agua exterior, por lo que se ha aplicado para la caracterización de las fuentes, como se muestra en el apartado 4.1.

Se han realizado tres ajustes al modelo MCC, para las curvas de concentración de radón en agua de las tres fuentes presentadas. Los ajustes obtenidos son bastante razonables, siendo el mejor el de la ‘fuente 2’ con un coeficiente de determinación ajustado $R^2 = 0.948$, frente a los coeficientes de determinación $R^2 = 0.742$ y $R^2 = 0.937$ obtenidos para las fuentes 1 y 3, respectivamente.

La ‘fuente 2’ también presenta los valores más altos para la concentración máxima $C_{\max} = (396 \pm 4) \text{ Bq l}^{-1}$ y la tasa de producción de radón $\phi = (5.3 \pm 0.4) \text{ Bq l}^{-1}\text{h}^{-1}$. Mientras que la ‘fuente 1’ con el peor ajuste es la que tiene unos valores para la concentración máxima y la tasa de emisión de radón más bajos, $C_{\max} = (168 \pm 3) \text{ Bq l}^{-1}$ y $\phi = (1.3 \pm 0.3) \text{ Bq l}^{-1}\text{h}^{-1}$.

A partir de estos resultados se puede deducir que el modelo MCC funciona mejor para concentraciones de radón en agua más altas.

El Modelo de Compartimento Abierto se plantea para situaciones en donde hay un intercambio de volumen de agua con distinta concentración a la del volumen principal del agua problema. Por lo tanto este modelo se puede aplicar para las medidas de la monitorización en continuo del acuífero simulado, donde se ha ido modificando el volumen de agua al añadir y quitar agua con distintas concentraciones de radón, para simular las etapas de recarga y descarga del acuífero.

Se ha realizado un ajuste al modelo MCA para una situación de simulación de recarga del acuífero, al añadir 6 l de agua del grifo a una de las fuentes con volumen principal $V_0 \approx 17 \text{ l}$, en un intervalo de 10 min.

Los valores de la concentración de radón en agua utilizados para el ajuste corresponden a la primera parte de la Figura 29 donde la fuente estudiada, como ya se ha mencionado antes, contiene aproximadamente 17 l agua y una muestra de tierra con $m = (143.76 \pm 0.02) \text{ g}$ y concentración $C_{\text{Ra-226}} = (761 \pm 24) \text{ kBq kg}^{-1}$.

En la Figura 34 se muestran los datos experimentales y el ajuste realizado.

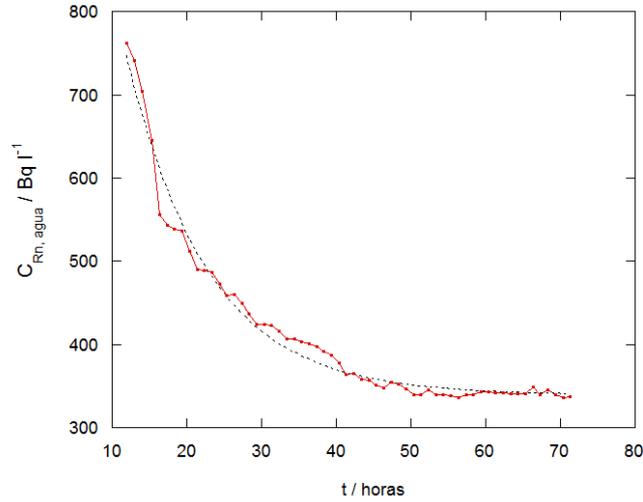


Figura 34: Representación gráfica de la concentración de radón en agua, con un error del 3 % en función del tiempo en horas. Los cuadrados rojos representan los valores experimentales y la línea de guiones negra el ajuste al modelo MCA.

El ajuste de los datos experimentales a la ecuación (21) que rige el modelo MCA parece razonable, con un coeficiente de determinación ajustado $R^2 = 0.980$. Los valores obtenidos para los parámetros de ajuste son los siguientes:

$$\begin{aligned} C_1 &= (1573 \pm 73) \text{ Bq l}^{-1} \\ \lambda' &= (0.092 \pm 0.004) \text{ h}^{-1} \\ d &= (31.2 \pm 1.6) \text{ Bq l}^{-1}\text{h}^{-1} \end{aligned} \quad (22)$$

Se puede estimar la constante λ_I de intercambio de volumen de agua por unidad de tiempo a partir de los volúmenes de agua empleados como:

$$\lambda_I \approx \frac{6 \text{ l}/17 \text{ l}}{1/6 \text{ h}} = 2 \text{ h}^{-1} \quad (23)$$

En cuanto a la tasa de emisión de radón de la fuente utilizada, se ha realizado una estimación a partir de las medidas de la concentración de radón en agua realizadas por espectrometría gamma obteniendo $\phi \approx 10 \text{ Bq l}^{-1}\text{h}^{-1}$.

A partir de estas estimaciones y del valor del parámetro d ajustado, se puede hallar la concentración de radón en agua C' añadida en el intercambio:

$$d = \phi + \lambda_I C' \longrightarrow C' = \frac{d - \phi}{\lambda_I} \approx 10 \text{ Bq l}^{-1} \quad (24)$$

Esta concentración $C' \approx 10 \text{ Bq l}^{-1}$ obtenida para el agua del grifo, aparentemente sin concentración inicial, es razonable ya que está por debajo del límite de detección del detector de NaI(Tl) utilizado.

Por tanto se puede afirmar que para esta situación el modelo MCA aplicado es razonable, si bien la comprobación realizada se basa en estimaciones así que debería estudiarse con más profundidad.

4.6 Observaciones

El montaje experimental para medir con el dispositivo GEO-RTM 2100, cuyo esquema se muestra en la Figura 16, presenta algunos problemas. Hay que tener especial cuidado al disponer el circuito de agua y asegurarse de que la circulación sea continua, evitando que se formen burbujas de aire y que el agua pueda quedarse estancado en el interior del recipiente donde se encuentra el tubo de silicona. En el caso de que se produzca una mala circulación, la concentración de radón medida en el detector puede no ser representativa del agua sometida a estudio.

Por ejemplo, en las medidas de la concentración de radón que se muestran en última parte de la Figura 28 se observan bajadas en la concentración que pueden deberse a la mala circulación del agua.

En cuanto al circuito de aire, hay que prestar atención a los tubos conectores empleados en el circuito, para evitar las posibles pérdidas por difusión de radón al aire exterior antes de entrar en el detector.

Además, se ha observado que cuando se tiene una fuente con una determinada concentración de radón en agua inicial y se pone a medir con el dispositivo GEO-RTM 2100 la concentración del agua disminuye. La explicación sugerida es que esto se produce porque el agua que estaba estática al principio comienza a circular y hay pérdidas debidas en parte al posible burbujeo. Sin embargo, estas pérdidas no se han podido cuantificar porque los valores observados para algunas de las fuentes medidas varían de forma diferente.

El desarrollo de las fuentes no ha presentado muchas dificultades, sin embargo cabe destacar algunas observaciones. El sistema utilizado del recipiente de cristal con la membrana de silicona ha resultado ser muy efectivo. Sin embargo cuando las muestras de tierra dentro de los recipientes de cristal cerrados con membranas de silicona llevan mucho tiempo (8-10 semanas), al sacarlas tienen humedad. Esta humedad puede afectar a la producción de ^{222}Rn de la muestra, por lo que se debe tener en cuenta.

La fuente desarrollada para generar radón en agua a través del circuito de aire con el tubo de silicona sumergido en el agua, genera una concentración que no es homogénea debido a la disposición de los tubos, como se puede ver en el ejemplo de la Figura 27. Además se producen pérdidas de radón por como está colocado el tubo de silicona.

Para este tipo de fuente se ha desarrollado en el LaRUC un prototipo más avanzado que consiste en un tanque cerrado con un tubo de silicona distribuido de forma uniforme en su interior, varias tomas para colocar el circuito de aire y sondas, y dos grifos para extraer muestras de agua del interior del cubo. Este nuevo diseño, mostrado en la Figura 35, deja abierta una vía para posteriores estudios en la misma línea de este trabajo y además mejora otra versión previa de esta fuente desarrollada por el grupo y utilizada en 2011 en una intercomparación de radón en agua [18].



Figura 35: Imagen de la fuente donde se distingue un tanque lleno de agua con un tubo de silicona en su interior, y fuera un circuito de aire con una bomba, tubos conectores, muestras de tierra en una caja cerrada y una fuente de radón.

5 Conclusiones

- El seguimiento de la concentración de ^{222}Rn en las aguas es una herramienta muy útil para el estudio de acuíferos y aguas subterráneas. En el desarrollo de este trabajo se ha puesto a punto un equipo de medida de la concentración de radón en agua en continuo, realizando medidas en un recipiente con agua y muestras de tierra que representa un modelo muy simplificado de un acuífero natural. También se han intentado simular situaciones de vaciado y recarga de acuíferos añadiendo y sustrayendo agua del simulador con el objeto de comprobar la sensibilidad del equipo a las variaciones de la concentración de radón en agua.
- Para la puesta a punto del sistema de medida de radón en agua se han desarrollado distintas fuentes generadoras de radón en agua, adaptando fuentes de radón. Las fuentes utilizadas se han caracterizado y se han obtenido altas concentraciones de radón disuelto en agua a partir de ellas.
- Las medidas de la concentración de radón ^{222}Rn en agua se han realizado por medio de distintas técnicas. Los sistemas de medida empleados han sido el dispositivo GEO-RTM 2100 de medida de radón en continuo y espectrometría gamma en un detector de NaI(Tl). Ambos métodos se han puesto a punto y calibrado para obtener medidas de la concentración de radón en el agua.

Además se ha realizado un test adicional con un sistema formado por un dispositivo Radon Scout en un recipiente cerrado por una membrana de silicona.

- Los modelos teóricos MCC y MCA presentados para explicar el comportamiento de la concentración de radón se han tomado de otro estudio realizado en el LaRUC, basado en la aplicación en una instalación termal del sistema de monitorización de radón en continuo [17].

Se han aplicado estos modelos teóricos, comprobando que el MCC es útil para la caracterización de las fuentes generadoras de radón en agua. Aunque queda por definir el rango de aplicación de este modelo, ya que se han observado mejores resultados para concentraciones de radón mayores.

El MCA se ha intentado aplicar a situaciones de intercambio de volúmenes de agua en el 'acuífero', obteniendo un éxito relativo para la situación de recarga estudiada. Por lo tanto se requiere un mayor número de experiencias y un estudio en profundidad de las situaciones de intercambio de volumen de agua.

- En cuanto a las perspectivas de futuro, una clara conclusión de este trabajo es que sería bueno continuar realizando más experiencias para mejorar el estudio desarrollado.

También sería interesante realizar medidas con las sondas externas que miden parámetros físico-químicos, ya que en este trabajo no se ha podido. El estudio de estos parámetros y su calibración puede dar lugar a correlaciones interesantes con la concentración de radón en el agua, relacionadas con el proceso de recarga y descarga de acuíferos.

Por lo tanto quedan abiertas muchas opciones para ampliar este estudio, haciendo medidas de la concentración de radón en agua más prolongadas en el tiempo y realizando simulaciones más complejas en el futuro.

Bibliografía

- [1] L.S. QUINDÓS, “Radón. Un gas radiactivo de origen natural en su casa”, CSN (1995)
- [2] L.S. QUINDÓS, J. SOTO, E. VILLAR, “La relación Bi-214/Pb-214 como trazador en los procesos de difusión atmosférica”, Departamento de Física Fundamental, Facultad de Ciencias, Universidad de Santander
- [3] P. PEÑA, M. BALZAZAR, J.H. FLORES RUIZ, A. LÓPEZ MARTÍNEZ, “Utiliación del gas radón como un trazador geofísico natural”. IX International Symposium: XIX National Meeting on Solid State Dosimetry, Mexico city (2006)
- [4] L. ORTEGA, M. MANZANO, E. CUSTODIO, J. HORNERO, J. RODRÍGUEZ-ARÉVALO, J., “Using Rn-222 to identify and quantify groundwater inflows to the Mundo River (SE Spain)”, Chemical Geology Vol. 395 (2015), p. 67-79
- [5] K. S. KRANE, “Introductory nuclear physics” Ed Wiley, New York (1988), p. 160-165
- [6] R. EISBERG, R. RESNICK, “Física cuántica: átomos, moléculas, sólidos, núcleos y partículas”, Ed Limusa, Mexico (1978), p. 555-584
- [7] JOSE-LUIS GUTIÉRREZ VILLANUEVA, *PhD Thesis: “Radon concentrations in air, soil, and water in a granitic area: instrumental development and measurements”*, Universidad de Valladolid (2008)
- [8] B. R. MARTIN, “Nuclear and particle physics” Ed Wiley, New York (2006), p. 55-67, 238-252
- [9] JOSE ANDRÉS LIAÑO, *Apuntes asignatura ‘Ampliación de Hidrología’*, ETS Ingenieros de Caminos, Canales y Puertos, Universidad de Cantabria (2012)
- [10] M.V. VÉLEZ, L.M. VÁSQUEZ, “Métodos para determinar la recarga en acuíferos”. Universidad Nacional-Medellín, Colombia (2004)
- [11] H. SURBECK, “Dissolved gases as natural tracers in karst hydrogeology; radon and beyond”, Center of Hydrogeology (CHYN), University of Neuchâtel, Switzerland (2007)

- [12] SARAD GMBH, “*Measurement of the Radon concentration of water samples*”, Dresden, Germany (2007)
- [13] C. COSMA, M. MOLDOVAN, T. DICU, T. KOVACS, “*Radon in water from Transylvania (Romania)*”, Radiation Measurements Vol. 43, 8 (2008), p. 1423-1428
- [14] SARAD GMBH, “*Operation manual RTM 2100 (Radon /Thoron monitor)*”, Version 10/2003
- [15] SARAD GMBH, “*User manual RADON SCOUT*”, Version 12/2013
- [16] L.S. QUINDÓS, P.L. FERNÁNDEZ, C. SAINZ, J. ARTECHE, J.G. AROZAMENA, A.C. GEORGE, “*An improved scintillation cell for radon measurements*”, Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A-Accelerators Spectrometers Detectors and Associated Equipment Vol. 66, 12 (2003), p. 606-609
- [17] DANIEL RÁBAGO GÓMEZ, *Trabajo fin de carrera: “Aplicación de un sistema de monitorización de la concentración de gas radón en el agua de una instalación termal”*, Universidad de Cantabria (2013)
- [18] J.L. GUTIÉRREZ, C. SAINZ, I. FUENTE, L. QUINDÓS, J. QUINDÓS, A. FERNÁNDEZ, S.E. CASAL, D. LÓPEZ, D. ARTECHE, E. FERNÁNDEZ, L.S. QUINDÓS, “*International Intercomparison exercise on Natural Radiation Measurements under Field Conditions*”, Ed PubliCan, ediciones de la Universidad de Cantabria (2012, p. 14-16)
- [19] C. A. ROBA, D. NITA, C. COSMA, V. CODREA, S. OLAH, “*Correlations between radium and radon occurrence and hydrogeochemical features for various geothermal aquifers in Northwestern Romania*”. Geothermics 42 (2012), p. 32-46
- [20] R.N. LÓPEZ, N. SEGOVIA, M.B.E. LÓPEZ, M.A. ARMIENTA, J.L. SEIDEL, P. PEÑA, L. GODINEZ, “*Comportamiento de radón, compuestos químicos y elementos estables en agua subterránea*”. Congreso Técnico Científico ININ-SUTIN (2001)
- [21] H. SURBECK, “*A Radon-in-Water Monitor Based on Fast Gas Transfer Membranes*”, Int. Conf. on Technologically Enhanced Natural Radioactivity (TEMR) caused by non-uranium mining, in Szczyrk, Poland (1996)
- [22] A. SCHMIDT, M. SCHLUETER, M. MELLES, M. SCHUBERT, “*Continuous and discrete on-site detection of radon-222 in ground- and surface waters by means of an extraction module*”, Applied Radiation and Isotopes Vol. 512, 3 (2008), p. 1939-1944
- [23] I. HUNYADI, I CSIGE, J. HAKL, E. BARADACS, Z. DEZSO, “*Temperature dependence of the calibration factor of radon and radium determination in water samples by SSNTD*”, Radiation Measurements Vol. 31, 1-6 (1999), p. 301-306