



Universidad
de Huelva



Estudio del transporte de radón en la cubierta de sellado de los fosfoyesos; propuesta de optimización para su reducción al fondo ambiental

Dirige: Dr. Juan Pedro Bolívar Raya
Universidad de Huelva
Grupo de Física de Radiaciones y medio Ambiente (FRYMA)

Informe Final

Índice

Listado de Figuras.....	2
Listado de Tablas	3
1. Resumen.....	4
2. Materiales y métodos	4
2.1 Diseño del experimento	4
2.2 Fundamento teórico.....	6
3. Resultados	7
3.1 Preparación y caracterización del material emisor	7
3.2 Caracterización de las capas de cobertura.....	10
Medidas adicionales usando una geomembrana en un suelo de referencia	12
3.3 Medidas de tasa de exhalación <i>insitu</i>	14
4. Conclusiones	17
Referencias	19

Listado de Figuras

Figura 1. Esquema de una cámara de acumulación <i>insitu</i>	6
Figura 2. Fotografía de los prismas una vez introducido el fosfoyeso.	8
Figura 3. Fotografía del prisma 2 con la geomembrana durante una medida (a), detalle de la geomembrana en el prisma 2 (b) y fotografía prisma 3 tras introducir 40 cm de tierra vegetal (c).....	11
Figura 4. Fotografía de la colocación de la geomembrana en el suelo de referencia (a), detalle del suelo de referencia desde un lateral (b), detalle de la altura de la caja que contiene el suelo de referencia (c).	13
Figura 5. Fotografías de la instrumentación colocada en la zona 1. En la foto superior se muestra el equipo RTM midiendo la exhalación sobre la tierra vegetal. En la foto inferior se muestra el equipo Rad 7 midiendo directamente sobre la capa de fosfoyeso, a unos 23 cm de profundidad, y un Radon Scout midiendo radón ambiental.....	15
Figura 6. Concentración de Ra-226 en función de la profundidad en la zona restaurada..	16
Figura 6. Fotografías del testigo recién extraído.	17

Listado de Tablas

Tabla 1. Estimación de la altura y el contenido de cada prisma.....	4
Tabla 2. Masa, altura de la columna, densidad aparente (“ <i>bulk density</i> ”) y contenido en Ra-226 del fosfoyeso introducido en cada prisma.	8
Tabla 3. Exhalación y desviación estándar (1σ), en $\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$, y número de experimentos entre paréntesis para cada prisma y equipo de medida.	9
Tabla 4. Resultados z-test para cada combinación de equipos en cada prisma	9
Tabla 5. Exhalación de referencia y desviación estándar (1σ), en $\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$, y número de experimentos entre paréntesis para cada prisma.	9
Tabla 6. Resultados de exhalación, desviación estándar (1σ), en $\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$, y reducción porcentual respecto a la referencia para cada prisma en función del material introducido.	11
Tabla 7. Resultados de exhalación, desviación estándar (1σ), en $\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$, número de experimentos entre paréntesis y reducción porcentual respecto a la referencia para el suelo de referencia con y sin geomembrana	13
Tabla 8. Resultados provisionales de exhalación, desviación estándar (1σ), en $\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$, y reducción porcentual respecto a la referencia para cada experimento realizado en la zona 1 de las balsas de fosfoyeso.....	15
Tabla 9. Profundidad y concentración de radio de cada muestra obtenida a partir del testigo.	15

1. Resumen

Las marismas del Río Tinto acumulan más de 100 Mt de un residuo procedentes de la fabricación de fertilizantes fosfatados (fosfoyeso, FY), ocupando 1000 ha. Los niveles de radionucleidos (RN) de la serie del ^{238}U en el FY son unas 30 veces superiores a suelos típicos, por lo que está clasificado como residuo NORM (*Naturally Occurring Radioactive Material*). El Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) reconoce este emplazamiento como zona radiológicamente contaminada.

En el estado actual los depósitos de FY emiten RN hacia su entorno por dos vías: (1) atmosférica (^{222}Rn y material particulado); (2) acuática, lixiviados laterales y profundos. En este proyecto nos centraremos en evaluar la vía atmosférica y cuantificar si la tecnología e ingeniería propuestas en el proyecto de restauración de las balsas elimina la exhalación de radón actualmente existente.

En proyectos anteriores, y en las condiciones actuales, el grupo de investigación que propone este proyecto -Física de Radiaciones y Medio Ambiente (FRyMA)- ha realizado un mapa de exhalación (o flujo) del radón emanado por la superficie de las balsas hacia la atmósfera, encontrándose que en algunas de las zonas sin restaurar se sobrepasan los valores recomendados por la US-EPA, que es de 20 pCi/m²s (unos 2670 Bq/m²h). No obstante, aclarar que este umbral establecido por la US-EPA es para el valor medio de un área relativamente extensa, y no para valores puntuales.

Por tanto, es muy necesario evaluar la tasa de exhalación de radón de las balsas para diferentes condiciones de la cubierta del sellado superficial que se realice, y en concreto para la tecnología concreta indicada en el proyecto de restauración y clausura, aprobado por Resolución de 23 de septiembre de 2020, de la Dirección General de Calidad y Evaluación Ambiental, por la que se formula declaración de impacto ambiental del proyecto "Clausura de las balsas de fosfoyesos en el término municipal de Huelva" (BOE» núm. 263, de 5 de octubre de 2020, páginas 84443 a 84474).

Por tanto, el objetivo central de este proyecto es analizar el efecto sobre la exhalación de radón de las diferentes capas usadas en el sellado superficial de los depósitos de FY, tanto experimentalmente como mediante un modelo de transporte vertical, con objeto de evaluar las características de los materiales, así como sus espesores, que eliminan hasta valores de fondo la exhalación de radón en los depósitos de FY.

Los resultados obtenidos mejorarán el proyecto de recuperación y clausura de estos depósitos presentado por la empresa responsable. Las herramientas desarrolladas y las conclusiones obtenidas ayudarán en la toma de decisiones de los diferentes actores implicados en su gestión, ya sea a escala local, autonómica o estatal.

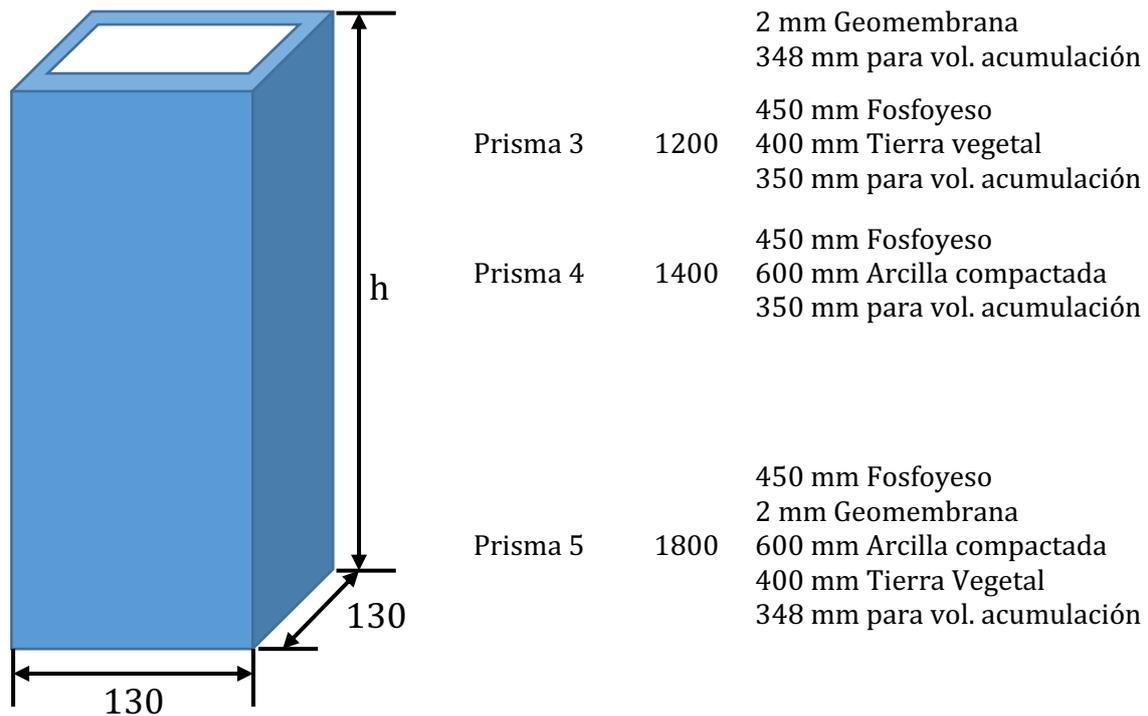
2. Materiales y métodos

2.1 Diseño del experimento

Se han construido 5 prismas de base cuadrada, totalmente estancos, transparentes, cerrados por abajo, pero abiertos por arriba. Los lados interiores tienen 130 mm y las alturas variarán en función de su objetivo. En la siguiente tabla se indica su contenido y la altura total (h) de cada prisma correspondiente:

Tabla 1. Estimación de la altura y el contenido de cada prisma.

	h (mm)	Contenido
Prisma 1	800	450 mm Fosfoyeso 350 mm para vol. acumulación
Prisma 2	800	450 mm Fosfoyeso



De este modo es posible estudiar el efecto del FY aislado, el de cada material de manera individual y el efecto de las tres capas en conjunto.

Durante el período de experimentación en laboratorio se pasará por tres fases:

1. **Control de calidad:** En primer lugar, es necesario comprobar la estanqueidad de los prismas, contruidos en metacrilato transparente por una empresa externa, de manera que se pueda verificar que las fugas que permitan al radón escapar del mismo son mínimas.
2. **Establecimiento de la exhalación de referencia:** De acuerdo al diseño de experimento, todos los prismas tienen la misma cantidad de fosfoyeso, de forma que todos deberán tener la misma tasa de exhalación. Esto permite comparar los prismas entre sí, estudiando el efecto que tiene cada material sobre el transporte de radón.

En esta fase se colocará la misma cantidad de fosfoyeso en todos los prismas y se realizará una ronda de medidas donde se verificará que la tasa de exhalación es la misma en todos los casos.

Durante esta fase también se comprobará la estabilidad de la capa de fosfoyeso, verificando que la tasa de exhalación es constante en el tiempo.

3. **Medida de la tasa de exhalación bajo distintas cubiertas de sellado del fosfoyeso:** Una vez establecida la tasa de exhalación de referencia, se introducirán en cada prisma los materiales en estudio para la cubierta. En esta fase se realizarán los experimentos de medida de la tasa de exhalación de radón para evaluar el factor de reducción de cada material en relación al fondo natural de un suelo típico de Huelva.

Una vez finalizadas estas tres fases, el objetivo principal del proyecto estará finalizado. A partir de aquí será posible realizar experimentos adicionales en función de las necesidades del modelo de transporte de radón en los materiales granulados existentes en la columna de fosfoyeso.

2.2 Fundamento teórico

La forma de medir la tasa de exhalación se basa en confinar el radón que escapa del material en un volumen de acumulación. Cuando se mide *in situ* esto se hace “clavando” una caja en el suelo, de manera que el radón exhalado del suelo queda confinado en el volumen de la caja (**Figura 1**).

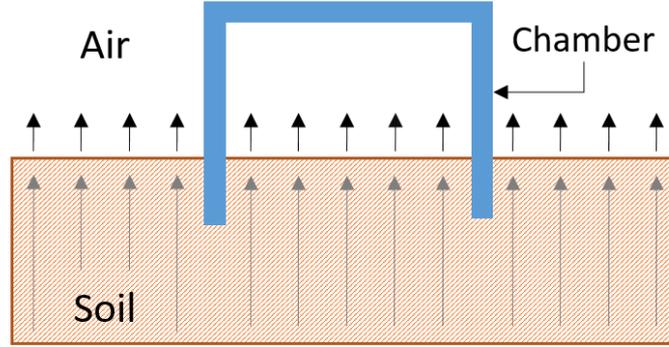


Figura 1. Esquema de una cámara de acumulación *in situ*.

En este proyecto se ha introducido el material emisor, fosfoyeso, directamente en un volumen de acumulación, el prisma, de manera que no sea necesario insertar una cámara en un suelo de referencia. El material se ha depositado en el interior del prisma y una vez colocado no es necesario volver a perturbarlo.

La concentración de radón en la cámara es un balance entre el radón generado en el material emisor y el radón que se pierde debido a su decaimiento natural o a las fugas del sistema (Gutiérrez-Álvarez et al., 2020b; Jonassen, 1983; López-Coto et al., 2009; Seo et al., 2018):

$$\frac{dC(t)}{dt} = \frac{E_0 S}{V} - (\lambda_{Rn} + \lambda_b + \lambda_l)C(t) \quad (1)$$

donde:

- $C(t)$ Concentración de radón en la cámara ($Bq\ m^{-3}$)
- E_0 Exhalación libre ($Bq\ m^{-2}\ h^{-1}$)
- S Superficie de exhalación (m^2)
- V Volumen de acumulación (m^3)
- λ_{Rn} Cte. de desintegración de radón (s^{-1})
- λ_b Cte. de “retrodifusión” (s^{-1}) (radón que entra a la cámara, pero vuelve al FY)
- λ_l Cte. de tiempo debido a las fugas del sistema (s^{-1})

La solución a la ecuación (1) es una función exponencial:

$$C(t) = C_{sat} + (C_0 - C_{sat})e^{-\lambda_{ef}t} \quad (2)$$

Donde λ_{ef} es la “Constante de tiempo efectiva” (la suma de las otras constantes de tiempo: $\lambda_{ef} = \lambda_{Rn} + \lambda_b + \lambda_l$) y C_{sat} es la concentración de saturación del sistema. Esta ecuación indica que el radón crecerá rápidamente al principio y luego irá reduciendo el ritmo de crecimiento hasta detenerse y llegar a la concentración de saturación.

Si la constante efectiva es lo suficientemente pequeña, se puede aproximar la exponencial por $1 - \lambda_{ef}t$, obteniendo una ecuación lineal, más fácil de usar:

$$C(t)|_{\lambda_{ef}t \ll 1} \approx C_{sat}\lambda_{ef}t \quad (3)$$

Esto sólo es válido mientras se cumpla que: $e^{-\lambda_{ef}t} \approx 1 - \lambda_{ef}t$, lo cual sólo ocurre en el inicio de la acumulación y durante un tiempo limitado que depende del valor de λ_{ef} . Esto normalmente viene limitado por las fugas que tenga el sistema.

Finalmente, la exhalación libre, E_0 , se obtiene a partir de la constante efectiva, la concentración de saturación, y el volumen y superficie del sistema de medida:

$$E_0 = C_{sat}\lambda_{ef}\frac{V}{S} \quad (4)$$

Esta exhalación también se puede estimar mediante un modelo teórico en función de los parámetros del material emisor. (Gutiérrez-Álvarez et al., 2020a; Porstendörfer, 1994; Zhuo et al., 2006):

$$E_0 = \varepsilon\rho\lambda_{Rn}C_{Ra}tgh\left(\frac{z_0}{l_0}\right) \quad (5)$$

Donde ε es el factor de emanación, ρ es la densidad, C_{Ra} es la concentración de radio, z_0 es la altura de la capa de material emisor y l_0 es la longitud de difusión (~ 1 m en fosfoyeso).

3. Resultados

3.1 Preparación y caracterización del material emisor

Para la creación del material emisor de radón se usaron aproximadamente 46 kg de fosfoyeso (FY), los cuales se dejaron secar durante 3 meses en las condiciones ambientales interiores de humedad y temperatura, hasta peso constante. Tras esto, se procedió a la homogeneización del material por métodos de cuarteo, y su división en 5 partes iguales que se colocaron en recipientes independientes. Para asegurar su completo secado, éstos se secaron en el horno durante 3 días adicionales a 50 °C.

Tras el periodo de secado final, el FY se introdujo en los prismas, colocando en cada uno de ellos la misma cantidad de material. En la Figura 2 se muestra una imagen de los prismas una vez introducido el fosfoyeso. Dicha fotografía muestra que todos los prismas tienen el mismo volumen de material emisor en su interior, lo cual indica que se emitirá la misma cantidad de radón.



Figura 2. Fotografía de los prismas una vez introducido el fosfoyeso.

Para verificar la homogeneidad del material emisor se midió su contenido en radio mediante espectroscopía gamma. En la **Tabla 2** se muestran las cantidades depositadas en cada recipiente, la altura alcanzada dentro del prisma, el cálculo de la densidad aparente y la concentración de Ra-226 de la columna de FY en cada prisma.

Tabla 2. Masa, altura de la columna, densidad aparente (“*bulk density*”) y contenido en Ra226 del fosfoyeso introducido en cada prisma.

	Prisma 1	Prisma 2	Prisma 3	Prisma 4	Prisma 5
Masa fosfoyeso (± 0.01 kg)	9.05	9.05	9.06	9.15	9.07
Altura Fosfoyeso (± 0.1 cm)	45.0	45.0	45.0	44.9	44.7
Densidad aparente (± 0.02 g cm⁻³)	1.21	1.21	1.21	1.22	1.22
Concentración Ra226 (Bq kg⁻¹)	717 \pm 26	659 \pm 27	740 \pm 29	679 \pm 25	672 \pm 26

Se realizaron numerosas medidas de tasa de exhalación en cada uno de los prismas con tres equipos diferentes, dos RAD7 (R7-1 y R7-2) y un RTM 1662 (RTM). En la **Tabla 3** se muestran los resultados obtenidos usando el ajuste exponencial general de acuerdo con las

ecuaciones (2) y (4). Se observa que en, general, los datos medidos por los distintos equipos son consistentes entre sí, habida cuenta de las incertidumbres existentes. Debido a incompatibilidades con otras campañas de medida, no fue posible emplear el equipo R7-1 en el prisma 4.

Tabla 3. Exhalación y desviación estándar (1σ), en $\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$, y número de experimentos entre paréntesis para cada prisma y equipo de medida.

	Prisma 1	Prisma 2	Prisma 3	Prisma 4	Prisma 5
R7-1	335±50 (15)	318±18 (4)	328±24 (6)	-	329±24 (6)
R7-2	289±11 (7)	302±11 (6)	313±17 (7)	317±38 (7)	333±34 (6)
RTM	294±21 (6)	272±6 (4)	283±29 (6)	321±52 (9)	373±50 (10)

Con todo, para evaluar de manera consistente los datos, se ha hecho uso del parámetro z-test para evaluar los datos obtenidos (**Tabla 4**). En el caso del prisma 2, el equipo RTM presenta un mayor valor para el z-test con el resto de equipos, por lo que en este caso, los valores del RTM no serán tenidos en cuenta. Si bien el prisma 3 muestra que existe una cierta desviación entre los resultados del R7-1 y el RTM, estos dos son consistentes con el R7-2, por lo que se ha decidido que no hay razones estadísticas suficientes para no usarlos en el análisis. El resto de experimentos muestran valores por debajo de 1, indicando que no es posible asegurar que las dos poblaciones sean estadísticamente diferentes.

Tabla 4. Resultados z-test para cada combinación de equipos en cada prisma.

	Prisma 1	Prisma 2	Prisma 3	Prisma 4	Prisma 5
R7-1 vs R7-2	0.91	0.62	0.51	-	0.09
R7-1 vs RTM	0.75	2.45	1.15	-	0.79
R7-2 vs RTM	0.24	1.57	0.87	0.07	0.65

Para calcular la exhalación de referencia de cada prisma, se ha utilizado el promedio entre todos los experimentos. Atendiendo al resultado del z-test y al resto de valores de exhalación, en el caso del prisma 2, se ha tenido en cuenta sólo el equipo R7-1 y R7-2, tanto para el establecimiento de la exhalación de referencia como para los experimentos posteriores de medida de exhalación con distintas coberturas. De este modo, se elimina la posibilidad de error que pudiera introducir el uso del equipo RTM en el prisma 2. Los resultados para la exhalación de referencia se muestran en la **Tabla 5**. Un análisis z-test sobre estos resultados muestra que en todos los casos se obtiene un valor por debajo de 1, indicando que las exhalaciones de referencia no muestran diferencias estadísticamente significativas entre sí.

Tabla 5. Exhalación de referencia y desviación estándar (1σ), en $\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$, y número de experimentos entre paréntesis para cada prisma.

	Prisma 1	Prisma 2	Prisma 3	Prisma 4	Prisma 5
E_{ref}	315±43 (28)	308±19 (10)	308±29 (19)	319±45 (16)	350±44 (22)

La exhalación de referencia general se puede extraer haciendo el promedio de todos los valores, obteniéndose un valor de $E_{ref} = 320 \pm 42 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. Por otro lado, se ha estimado la exhalación teórica obtenida usando la ecuación (5), obteniéndose un valor de $351 \pm 28 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. Para obtener este valor se han empleado valores típicos obtenidos en la literatura junto a los siguientes parámetros derivados experimentalmente:

- $\rho = 1.21 \pm 0.01 \text{ kg m}^{-3}$
- $C_{Ra} = 693 \pm 34 \text{ Bq kg}^{-1}$
- $z_0 = 0.45 \pm 0.02 \text{ m}$

Se puede observar que el valor teórico y los distintos valores experimentales están próximos entre sí, evidenciando que el resultado se ajusta a lo esperado.

3.2 Caracterización de las capas de cobertura

Una vez establecida la exhalación de referencia, se introdujo dentro de los prismas distintas cantidades de los materiales presentes en la cobertura (geomembrana, arcilla y tierra vegetal) con el objetivo de evaluar la capacidad de contención de radón de cada uno de ellos.

El prisma 1 funciona como un experimento de control, el cual se medirá varias veces para verificar que el material emisor no ha sufrido cambios durante la campaña de medidas. El prisma 2 se usará para comprobar la capacidad de la geomembrana para reducir la tasa de exhalación de manera aislada (**Figura 3. a, b**)

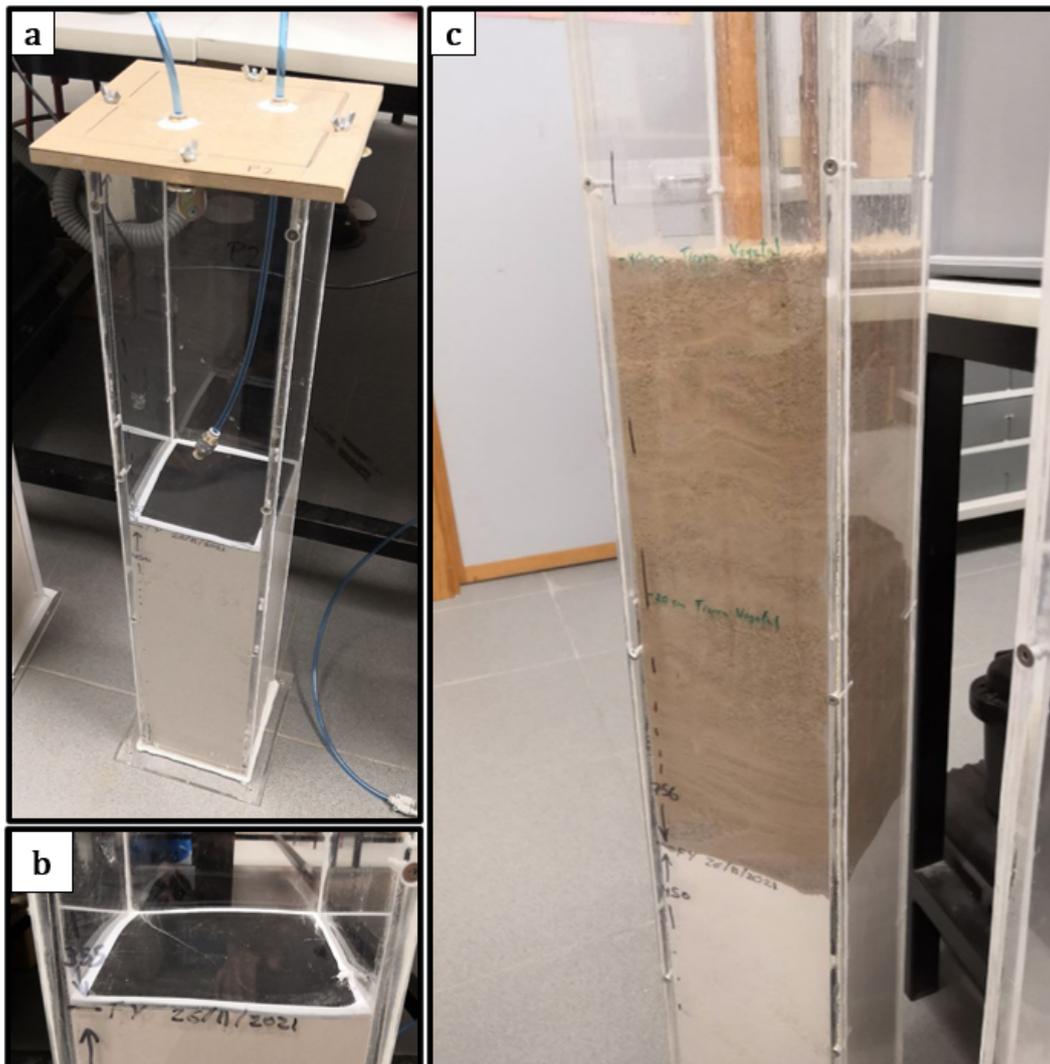


Figura 3. Fotografía del prisma 2 con la geomembrana durante una medida (a), detalle de la geomembrana en el prisma 2 (b) y fotografía prisma 3 tras introducir 40 cm de tierra vegetal (c).

Por otro lado, los prismas 3 y 4 se usarán para medir la variación de la tasa de exhalación al introducir tierra vegetal (**Figura 3. c**) y arcilla compactada. Para ello, estos materiales se depositarán en sucesivas capas de 20 cm y se medirá la tasa de exhalación resultante en cada etapa. Para acotar la duración de la campaña de experimentos, sólo se han realizado un máximo de 5 medidas por cada capa de 20 cm, aumentando en mayor medida el número de experimentos una vez alcanzada la altura final en cada prisma, esto es 40 cm de tierra vegetal en el prisma 3 y 60 cm de arcilla compactada en el prisma 4.

Por último, el prisma 5 se usará para medir la capacidad de limitar la exhalación de radón de todas las capas en conjunto: Geomembrana, 60 cm arcilla compactada y 40 cm de tierra vegetal.

Los resultados obtenidos se recogen en la **Tabla 6**. En dicha tabla se muestra la tasa de exhalación obtenida para cada experimento junto al porcentaje de reducción. La reducción se calcula como el porcentaje respecto a la exhalación que existe con sólo fosfoyeso, restando la exhalación de fondo estimada en $40 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, de acuerdo con la literatura. Es decir, 0% si la exhalación es la misma que con sólo fosfoyeso y 100% si la exhalación es igual al fondo ambiental. A mayor porcentaje de reducción, más efectiva es la capa de cobertura en mitigar la exhalación de radón.

Tabla 6. Resultados de exhalación, desviación estándar (1σ), en $\text{Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, y reducción porcentual respecto a la referencia para cada prisma en función del material introducido.

Experimento	Exhalación ($\text{Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$)	Reducción (%)
<i>Prisma 1 - Fosfoyeso</i>	315 ± 43	-
<i>Prisma 2 - Fosfoyeso</i>	308 ± 19	-
<i>Prisma 2 – Fosfoyeso + Geomembrana</i>	164 ± 29	54
<i>Prisma 3 - Fosfoyeso</i>	305 ± 11	-
<i>Prisma 3 – Fosfoyeso + 20 cm Tierra Vegetal</i>	305 ± 26	0
<i>Prisma 3 – Fosfoyeso + 40 cm Tierra Vegetal</i>	290 ± 33	6
<i>Prisma 4 – Fosfoyeso</i>	319 ± 11	-
<i>Prisma 4 – Fosfoyeso + 20 cm Arcilla</i>	341 ± 19	0
<i>Prisma 4 – Fosfoyeso + 40 cm Arcilla</i>	287 ± 12	12
<i>Prisma 4 – Fosfoyeso + 60 cm Arcilla</i>	263 ± 18	20
<i>Prisma 5 – Fosfoyeso</i>	333 ± 14	-
<i>Prisma 5 – Fosfoyeso + Geomembrana</i>	298 ± 7	12
<i>Prisma 5 – Fosfoyeso + Geomembrana + 60 cm de arcilla</i>	247 ± 12	29
<i>Prisma 5 – Fosfoyeso + Geomembrana + 60 cm de arcilla + 40 cm de tierra vegetal</i>	210 ± 22	42

Se observa que el uso de la tierra vegetal no ofrece una reducción significativa (6%). La arcilla compactada parece ofrecer una mayor resistencia al paso del radón, pero esta apenas llega al 20% en el mejor de los casos. Esto indicaría que cualquiera de estos dos materiales individualmente no ofrecería una reducción óptima de la tasa de exhalación.

El uso de una geomembrana ofrece resultados dispares en el prisma 2 y el prisma 5. Mientras que en el prisma 2 se registró una reducción del 54%, los experimentos en el prisma 5 con sólo la geomembrana sólo alcanzaron una reducción del 12%. Esta diferencia

puede deberse a la dificultad de instalar una geomembrana de manera estanca en el prisma 5, el cual tiene un área de apenas 225 cm² y una profundidad de 1.4 m, necesaria para dar cabida a las capas de arcilla y tierra vegetal que debían colocarse encima de la geomembrana.

Si bien esto podría explicar parcialmente la diferencia entre ambas, los resultados no son coherentes, ya que una geomembrana de 2 mm tiene una permeabilidad al radón muy baja, por lo que debería reducir la exhalación de radón en mayor medida a lo registrado en los experimentos. Al fabricante de los prismas se le especificó que las uniones entre las caras de los prismas estuvieran selladas (soldadas con disolvente adecuado), pero se comprobó que dicha condición no se realizó. Por tanto, es muy probable que se esté produciendo fuga del radón a través de las uniones generando el denominado **efecto chimenea del Rn que se produce en las grietas del terreno**, debido a una incorrecta construcción de los prismas. En este caso, las paredes del prisma no estarían correctamente selladas entre sí, permitiendo que el radón accediera al espacio entre las mismas y ascendiera evitando el material de cobertura.

En esta situación, los resultados de la **Tabla 6** serían representativos de una situación en la que las capas de cobertura en las balsas hubieran sufrido una fractura, permitiendo que el radón usara caminos preferentes a través de éstas y reduciendo la efectividad de las medidas correctoras. Aún en este caso desfavorable, dados los datos obtenidos, se podría asumir que el uso de las 3 capas (geomembrana + arcilla + tierra vegetal) sería capaz de reducir la tasa de exhalación en torno a un 42%, lo cual es una reducción significativa. Con todo, esto también indicaría que es muy importante una correcta colocación de las capas de cobertura que eviten la existencia de aberturas que el gas radón pueda usar para escapar a la superficie.

Medidas adicionales usando una geomembrana en un suelo de referencia

Para verificar la hipótesis anterior, es decir, si la geomembrana evita la emisión del Rn, se empleó el suelo de referencia desarrollado por el grupo de investigación FRYMA (Gutiérrez-Álvarez et al., 2020b, 2020a). Este suelo consiste en una capa de 14 cm de espesor y 0.11 m² construida a partir de 70 kg de fosfoyeso, resultando en un suelo con una exhalación de 84.5 ± 0.9 Bq m⁻² h⁻¹. Se recortó una capa de geomembrana y se colocó sobre el suelo de referencia, sellándose con silicona acrílica, tal y como se muestra en la **Figura 4a**.

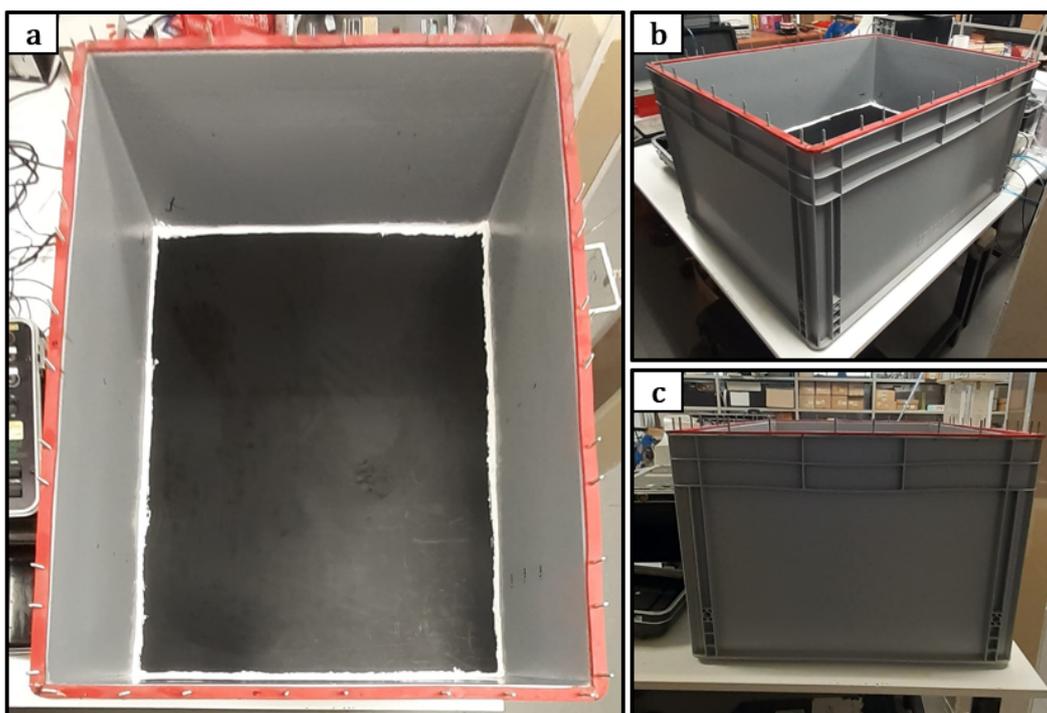


Figura 4. Fotografía de la colocación de la geomembrana en el suelo de referencia (a), detalle del suelo de referencia desde un lateral (b), detalle de la altura de la caja que contiene el suelo de referencia (c).

Los resultados obtenidos se muestran en la **Tabla 7. Las medidas obtenidas confirman que la geomembrana, una vez sellado adecuadamente el contacto de ella con las paredes de la cámara para reproducir las condiciones reales (superficie de las balsas muy extensa sin efectos de borde), reduce muy significativamente la exhalación del Rn, incluso por debajo de la exhalación natural promedio del suelo** (unos $40 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$). Sin considerar la exhalación natural, la exhalación **se ha reducido en un factor 36**. Debido a la baja tasa de exhalación, estos experimentos han requerido un mayor tiempo de medida, en torno a 5-7 días por cada medida, de forma que el calendario previsto se ha alargado considerablemente.

Tabla 7. Resultados de exhalación, desviación estándar (1σ), en $\text{Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, número de experimentos entre paréntesis y reducción porcentual respecto a la referencia para el suelo de referencia con y sin geomembrana.

Experimento	Exhalación ($\text{Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$)	Reducción (%)
<i>Suelo de referencia</i>	81.3 ± 5.7 (5)	-
<i>Suelo de referencia + Geomembrana</i>	2.2 ± 1.4 (11)	192

Estos resultados también indican la importancia de una correcta colocación de la geomembrana para alcanzar el máximo potencial. **Se debe extremar la precaución en la colocación de la geomembrana, evitando que aparezcan grietas y sellando correctamente las juntas entre membranas adyacentes.** De otro modo, su efectividad se reduciría significativamente tal y como se ha observado en las medidas originales.

Si bien se está trabajando en realizar más medidas añadiendo arcilla y tierra vegetal sobre la geomembrana, recreando en lo posible las condiciones previstas en la restauración de las balsas, estas medidas requerirán aún más tiempo para ser realizadas correctamente.

3.3 Medidas de tasa de exhalación *in situ*

Con objeto de analizar cómo actúa una restauración ya realizada y de comparar los resultados obtenidos en laboratorio con medidas *in situ*, se realizaron medidas de tasas de exhalación en una zona restaurada con una capa de unos 30 cm de tierra vegetal. En la **Figura 5** se muestran fotografías de la instrumentación empleada durante una de las campañas de medida.

En estos experimentos se midió la exhalación a la altura de la capa de fosfoyeso y sobre la capa de tierra vegetal. De este modo, se pudo calcular la reducción de la tasa de exhalación tal y como se hizo con los experimentos de laboratorio. Los resultados se muestran en la **Tabla 8**. Dueñas et al., 2007, usando cartuchos de carbón activo, reportó un amplio rango de valores para la tasa de exhalación, entre 50 y 1200 Bq m⁻² h⁻¹, con medias geométricas, dependientes de los tipos de zonas, **entre 150 y 450 Bq m⁻² h⁻¹**. Los resultados obtenidos son coherentes con dichas medidas.

Estos resultados muestran reducciones similares, si bien algo superiores, a las obtenidas en laboratorio. En el laboratorio, 40 cm de tierra lograron una reducción del 6%, mientras que en la zona restaurada, la reducción de 30 cm de tierra vegetal estuvo entre un 9% y un 20%, en concordancia con lo obtenido en el laboratorio. Es necesario recordar que las medidas de laboratorio pudieron verse afectadas por un “efecto chimenea”, que reduciría el efecto de la capa de tierra vegetal. En cualquier caso, **los datos en laboratorio e *in situ* muestran que una capa de tierra vegetal por sí sola no sería suficiente para disminuir la tasa de exhalación de radón de las balsas a niveles de fondo.**

Si bien es cierto que se observa una cierta variabilidad en función del mes del año, probablemente esto sea debido a las diferentes condiciones atmosféricas de cada medida. En los meses de diciembre y enero, se realizaron las mediciones poco después de días lluviosos, lo cual puede reducir las tasas de exhalación. En cambio, las medidas realizadas en febrero se hicieron después de un periodo de más de 25 días sin lluvias, lo cual reduciría el contenido de humedad tanto en la tierra como en el fosfoyeso, permitiendo una mayor tasa de exhalación.

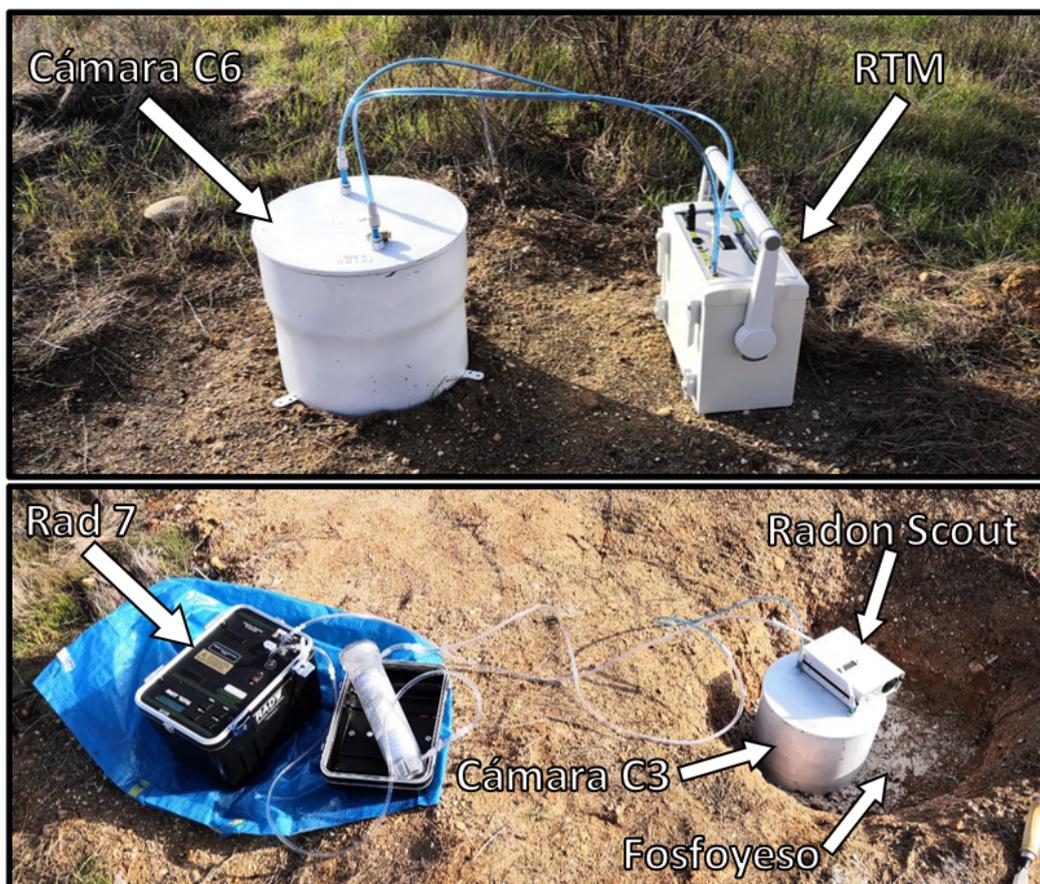


Figura 5. Fotografías de la instrumentación colocada en la zona 1. En la foto superior se muestra el equipo RTM midiendo la exhalación sobre la tierra vegetal. En la foto inferior se muestra el equipo Rad 7 midiendo directamente sobre la capa de fosfoyeso, a unos 23 cm de profundidad, y un Radon Scout midiendo radón ambiental.

Tabla 8. Resultados provisionales de exhalación, desviación estándar (1σ), en $\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$, y reducción porcentual respecto a la referencia para cada experimento realizado en la zona 1 de las balsas de fosfoyeso.

Fecha	Experimento	Exhalación ($\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$)	Reducción (%)
Diciembre 2021	RTM Fosfoyeso	443 ± 14	-
	Rad 7 Fosfoyeso	457 ± 15	-
Enero 2022	RTM Tierra	420 ± 17	8.9
	RTM Fosfoyeso	706 ± 46	-
Febrero 2022	Rad 7 Tierra	579 ± 16	19

Por otro lado, se ha tomado un testigo de suelo-FY en la zona de las medidas para poder evaluar el espesor de la capa de cobertura, así como las concentraciones de radio a lo largo del perfil vertical y su posible influencia en la tasa de exhalación. En la **Tabla 9** se muestra la profundidad a la que se recogió cada muestra y la concentración de ^{226}Ra medida en la misma. La concentración de radio en relación con la profundidad está también representada en la **Figura 6**. Por último, la **Figura 7** muestra una fotografía del testigo tras su extracción.

Tabla 9. Profundidad y concentración de radio de cada muestra obtenida a partir del testigo.

Código muestra	Rango profundidad (cm)	Concentración ^{226}Ra (Bq kg $^{-1}$)
1-FY	80-88	628 ± 44
2-FY	72-80	685 ± 48
3-FY	65-72	494 ± 35
4-FY	58-65	616 ± 43
5-FY	52-58	530 ± 37
6-FY	45-52	487 ± 34
7-FY	39-45	424 ± 31
8-FY	33-39	464 ± 33
9-FY	26-33	670 ± 47
10-FY	20-26	440 ± 32
11-Tierra	14-20	57.4 ± 5.4
12-Tierra	8-14	24.5 ± 5.2
13-Tierra	0-8	35.2 ± 6.7

Perfil vertical concentración de radio

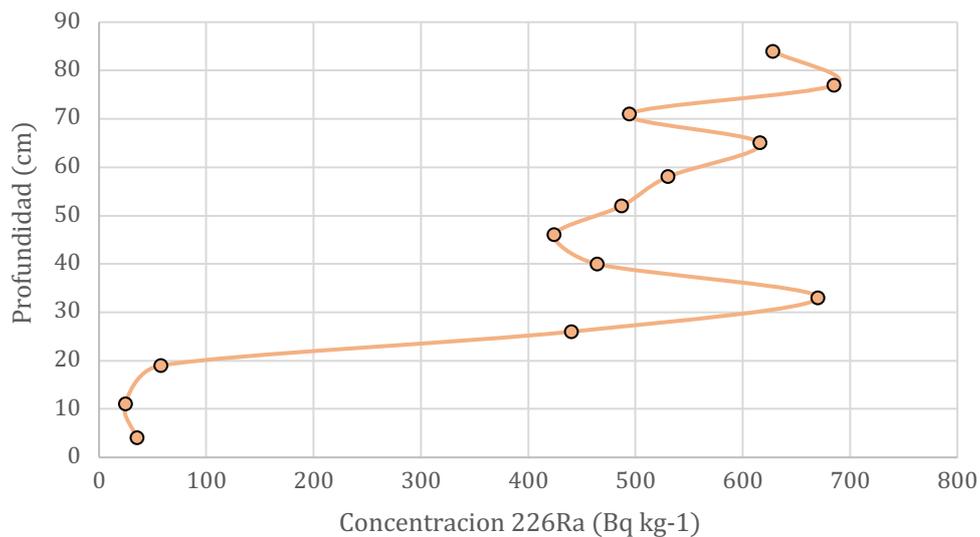


Figura 6. Concentración de Ra-226 en función de la profundidad en la zona restaurada.

De acuerdo con los datos, existe un salto significativo alrededor de los 30 cm de profundidad, coincidiendo con el cambio entre la cobertura de tierra vegetal y el fosfoyeso original. Este salto implica un cambio desde 25-50 Bq kg $^{-1}$ en la capa de tierra hasta los 440-670 Bq kg $^{-1}$, típicos del fosfoyeso. Si bien podría existir una pequeña transferencia del ^{226}Ra desde el fosfoyeso a la capa de tierra, ésta no es significativa, lo cual es debido a la movilidad relativamente pequeña que caracteriza al Ra en comparación con la de otros elementos químicos como, por ejemplo, el P o el U. Además, puede haberse producido una pequeña mezcla física existente en la interfase por efecto del muestreo (corte de la capa, como se observa en la figura 7 con interfase no nítida). Esto implica que la mayoría del radón que exhala por la superficie de la balsa actualmente restaurada proviene del fosfoyeso existente bajo la capa de tierra, desplazándose hasta la superficie a través de ésta.



Figura 7. Fotografías del testigo recién extraído.

4. Conclusiones

Con el objetivo de evaluar la efectividad de diferentes capas de cobertura para mitigar la tasa de exhalación de radón a la atmósfera, se han construido cinco prismas verticales con diferentes alturas. En cada uno de estos prismas, se ha depositado la misma cantidad de

material emisor y se ha verificado que las tasas de exhalación en cada uno de ellos son similares entre sí.

Se han realizado más de 200 medidas independientes de exhalación de Rn, comprobándose que existe una leve reducción de ésta al añadir unos 30-40 cm de tierra vegetal (o arcilla,) pero esta reducción **muy superior cuando se incluye una geomembrana**. Mientras que la tierra vegetal y la arcilla lograron reducciones de la tasa de exhalación de hasta un 20%, la **geomembrana logró reducir la exhalación en un factor 36**, incluso por debajo de la exhalación natural promedio, estimada en $40 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$.

Los resultados demuestran que el uso de una geomembrana es adecuado y recomendable para evitar la emisión de gas radón desde las balsas de fosfoyeso a la atmósfera.

El dispositivo experimental mostró que **el radón es capaz de viajar a través de cualquier camino preferencial que exista en las capas de cobertura, limitando significativamente la capacidad de éstas en reducir la tasa de exhalación**. De este modo, es importante asegurar un correcto sellado de la geomembrana, evitando grietas y desperfectos que permitan el transporte de radón. Incluso con la existencia de estos caminos preferenciales, los resultados de **los experimentos en laboratorio muestran que la combinación de Geomembrana + 60 cm de Arcilla + 40 cm de tierra vegetal es capaz de reducir la exhalación en al menos un 42%**.

Los datos alcanzados en el laboratorio se han comparado con las medidas realizadas en la zona restaurada de las balsas de fosfoyeso, obteniéndose valores totalmente compatibles. Como trabajo futuro, se recomienda realizar más medidas en la zona restaurada para lograr un mayor grado de confianza en los resultados y poder evaluar la influencia de las condiciones ambientales de temperatura, humedad, viento y presión atmosférica sobre la tasa de exhalación.

Referencias

- Dueñas, C., Liger, E., Cañete, S., Pérez, M., Bolívar, J.P., 2007. Rn from phosphogypsum piles located at the Southwest of Spain. *J. Environ. Radioact.* 95, 63–74. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.01.012>
- Gutiérrez-Álvarez, I., Guerrero, J.L., Martín, J.E., Adame, J.A., Bolívar, J.P., 2020a. Influence of the accumulation chamber insertion depth to measure surface radon exhalation rates. *J. Hazard. Mater.* 122344. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2020.122344>
- Gutiérrez-Álvarez, I., Martín, J.E., Adame, J.A., Grossi, C., Vargas, A., Bolívar, J.P., 2020b. Applicability of the closed-circuit accumulation chamber technique to measure radon surface exhalation rate under laboratory conditions. *Radiat. Meas.* 133, 106284. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2020.106284>
- Jonassen, N., 1983. The Determination of Radon Exhalation Rates. *Health Phys.* 45, 369–376. <https://doi.org/10.1097/00004032-198308000-00009>
- López-Coto, I., Mas, J.L., Bolívar, J.P., García-Tenorio, R., 2009. A short-time method to measure the radon potential of porous materials. *Appl. Radiat. Isot.* 67, 133–138.
- Porstendorfer, J., 1994. Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air. *J. Aerosol Sci.* 25, 219–263. [https://doi.org/10.1016/0021-8502\(94\)90077-9](https://doi.org/10.1016/0021-8502(94)90077-9)
- Seo, J., Nirwono, M.M., Park, S.J., Lee, S.H., 2018. Standard Measurement Procedure for Soil Radon Exhalation Rate and Its Uncertainty. *J. Radiat. Prot. Res.* 43, 29–38. <https://doi.org/10.14407/jrpr.2018.43.1.29>
- Zhuo, W., Iida, T., Furukawa, M., 2006. Modeling Radon Flux Density from the Earth's Surface. *J. Nucl. Sci. Technol.* 43, 479–482. <https://doi.org/10.1080/18811248.2006.9711127>