

UNIVERSITAT POLITÈCNICA DE CATALUNYA

*Instituto de Técnicas Energéticas de la Universidad Politécnica de
Cataluña, dentro del programa de Doctorado “Ingeniería Nuclear”*

**CONTRIBUCIÓN A LA
CARACTERIZACIÓN DE
AEROSOL RADIATIVOS
DERIVADOS DEL RADÓN**

Autor: Arturo Vargas Drechsler
Director: Xavier Ortega Aramburu

CAPÍTULO II

PROPIEDADES Y CARACTERÍSTICAS DE LOS DESCENDIENTES DEL RADÓN EN RECINTOS CERRADOS

II.1 Introducción

El radón-222 (^{222}Rn) es un gas noble radiactivo que pertenece a la cadena de desintegración natural del ^{238}U . El ^{222}Rn se forma en la desintegración del ^{226}Ra como muestra la cadena de desintegración representada en la figura II.1.

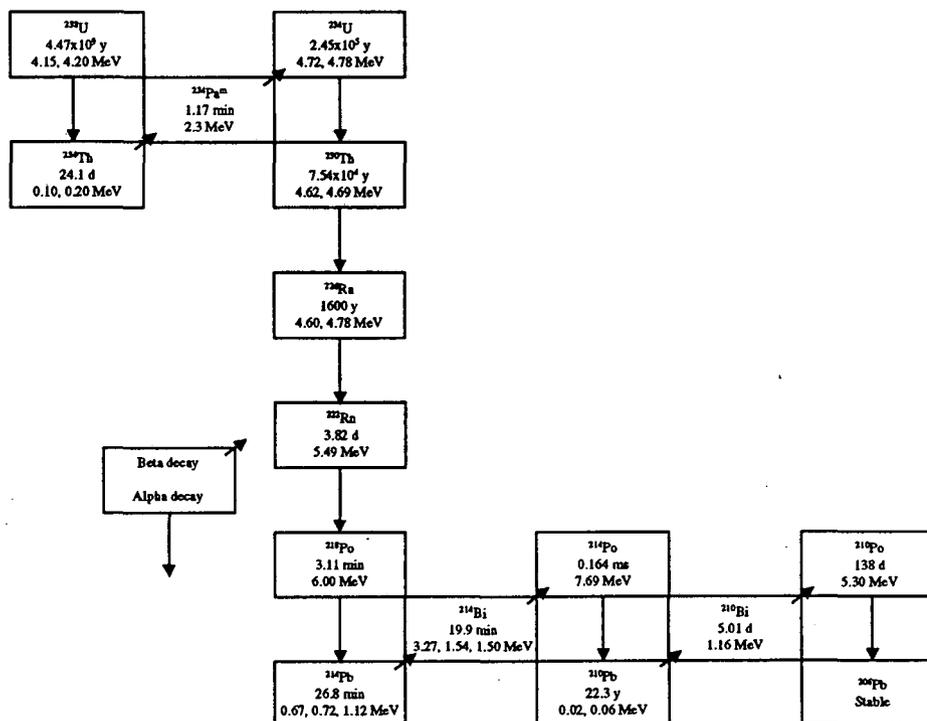


Fig. II.1. Cadena de desintegración natural del ^{238}U . Los periodos de semidesintegración y energías de las partículas α obtenidos de Browne y Firestone 1986. Las energías beta máximas obtenidas de NCRPM 86 (excepto para ^{234}Th y $^{234}\text{Pa}^m$ obtenidas de Lederer y Shirley 1978).

La presencia de trazas de uranio en todos los materiales terrestres produce en la mayoría de los suelos concentraciones de radón del orden de los kBq/m^3 (Hubbard y Hedberg 1996, Baixeras y col. 1996). El radón existente en los intersticios de los materiales puede salir a la atmósfera exterior o al interior de recintos cerrados en un nivel caracterizado por la tasa de exhalación ($\text{Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$). En el trabajo de revisión del tema presentado por Porstendörfer (1994) se muestra una relación de valores de la exhalación tanto en suelos como en materiales de construcción en función de sus características. El valor medio para el suelo es de $0.02 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ y para los materiales de construcción es, según dicho estudio, del orden de $5 \cdot 10^{-4} \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Si el ^{222}Rn penetra en un recinto cerrado el nivel de su concentración se incrementa hasta valores que pueden llegar a suponer un cierto riesgo radiológico. Las fluctuaciones de la concentración de radón en recintos cerrados es consecuencia de los gradientes de presión en las grietas de los fundamentos, la presencia de tuberías, canalizaciones y de otras posibles conexiones del suelo con el interior del edificio y a una tasa de infiltración que depende de la tasa de ventilación, de las condiciones de presión y temperatura y de las características de exhalación del suelo. En el trabajo de Ortega y Vargas 1996 se muestran estas fluctuaciones temporales en función de los parámetros ambientales en cuatro recintos de distintas áreas geográficas de Cataluña.

El ^{222}Rn es un gas químicamente inerte que por sí sólo no supone un daño radiológico significativo debido a su bajo nivel de retención en el organismo humano. Sin embargo, como se observa en la figura II.1, el ^{222}Rn se desintegra dando lugar a la formación de los descendientes de vida corta: ^{218}Po (RaA $T_{1/2} = 3.11 \text{ min.}$), ^{214}Pb (RaB $T_{1/2} = 26.8 \text{ min.}$), ^{214}Bi (RaC $T_{1/2} = 19.8 \text{ min.}$) y ^{214}Po (RaC' $T_{1/2} = 162 \mu\text{s}$) de manera que son estos radionucleidos descendientes del radón los responsables del daño radiológico, principalmente por las emisiones α del ^{218}Po y el ^{214}Po . El siguiente radionucleido es el ^{210}Pb que tiene un periodo de desintegración de 22.3 años y por tanto no influye de forma significativa en los cálculos dosimétricos.

El ^{218}Po , tras su proceso de nacimiento y frenado y alcanzar su velocidad de equilibrio termodinámica, reacciona muy rápidamente ($t < 1 \text{ s}$) con los gases traza y vapor de agua dando lugar a la formación de pequeñas partículas llamadas *clusters* o radionucleidos libres. El proceso de formación de los *clusters* depende de si el átomo de ^{218}Po está cargado eléctricamente o es neutro. Como consecuencia, para conocer las características de los *clusters* se debe estudiar el proceso de neutralización que puede producirse según tres mecanismos: a) recombinación con pequeños iones, b) captura electrónica y c) transferencia de electrones. Tanto la carga eléctrica del radionucleido como su tamaño influyen en el coeficiente de difusión que caracteriza el comportamiento dinámico de los radionucleidos libres, tal como se verá en el apartado II.3.5. Desde el punto de vista dosimétrico, los *clusters* presentan una carga dosimétrica por unidad de exposición de mayor valor y mayor variabilidad que la de los descendientes adheridos a partículas de aerosol, por ello el interés en su estudio (James y col. 1988 a, ICRP 66).

Reineking (CEC 97) ha realizado durante los últimos años una serie de medidas para la caracterización del espectro dimensional de la región de los descendientes del radón en estado libre bajo distintas condiciones medio ambientales. Las conclusiones obtenidas son objeto de discusión y están enmarcadas de forma muy directa en el trabajo

de esta tesis. Estas conclusiones pueden resumirse en los siguientes puntos: a) el diámetro máximo de los *clusters* radiactivos es de 5 nm, b) considerando la distribución del espectro dimensional como log-normal los diámetros medios están comprendidos entre 0.5 nm y 2 nm, c) las distribuciones son poco dispersas con una desviación geométrica típica menores de 1.4 y d) hay indicaciones de la presencia de tres modas dimensionales discretas en función de las condiciones medio ambientales (humedad relativa, concentración de ^{222}Rn , gases traza) y del comportamiento químico de los diferentes radionucleidos (Po, Pb, Bi). La estructura de modas, con diámetros medios de 0.55 nm y 0.86 nm, se puede asociar a la hipótesis de ser especies neutras y la presencia de una tercera moda de 1.31 nm puede estar relacionada con los *cluster* cargados. Estos valores, obtenidos con un sistema de medida que utiliza tamices metálicos, no están en consonancia con los realizados por Butterweck (CEC 97) que sólo obtuvo un diámetro medio de 0.89 nm para el ^{218}Po en medidas realizadas con tubos de difusión en cámara de atmósfera controlada.

Además de la formación de *clusters*, y de forma paralela, los radionucleidos se pueden adherir a partículas de aerosol existentes en la atmósfera en un tiempo comprendido entre 1 y 100 s (Porstendörfer 1994) dando lugar al aerosol radiactivo o fracción adherida. El espectro dimensional de esta región se sitúa en un rango comprendido entre unos 10 nm y 1 μm dependiendo de las características de las partículas presentes en el medio ambiente. En esta región dimensional suelen encontrarse dos modas de partículas: una de pequeño tamaño (decenas de nanómetro) llamada de nucleación en donde las partículas se encuentran en proceso de crecimiento, y una región de mayor tamaño denominada moda de acumulación, donde el crecimiento de las partículas es lento. Como se analizará en el apartado II.8 el tamaño de estas partículas radiactivas es de gran importancia en la evaluación de la dosis ocasionada por inhalación de los descendientes del radón.

En los siguientes apartados se estudiarán los distintos mecanismos que caracterizan a los descendientes del radón en recintos cerrados: neutralización, nucleación, adhesión a partículas de aerosol, deposición en paredes y suelos, desprendimiento de una partícula de aerosol por retroceso y ventilación. Se estudiarán las características de los descendientes en estado libre en función del coeficiente de difusión. Por último, se presenta una evaluación de la importancia de los distintos parámetros en la estimación de la dosis utilizando los modelos dosimétricos del tracto respiratorio.

II.2 Definiciones especiales, magnitudes y unidades

En este apartado se presentan algunas definiciones especiales, magnitudes y unidades que se utilizan de forma usual en el campo de los estudios de los descendientes del radón. El uso de estas definiciones especiales y las correspondientes magnitudes permite la estimación de los niveles de energía alfa depositados en las vías del sistema respiratorio, que es el objetivo del cálculo dosimétrico.

Radionucleido	j	T _{1/2}	Energía potencial alfa				
			por átomo (E _{pl})		por Bq (E _{aj})		k _{pi} *
			MeV	10 ⁻¹² J	MeV	10 ⁻¹⁰ J	
²²² Rn (Rn)	0	3.8 d	19.2	3.07	9.2 10 ⁶	1470	----
²¹⁸ Po (RaA)	1	3.05 min	13.7	2.19	3620	5.79	0.105
²¹⁴ Pb (RaB)	2	26.8 min	7.7	1.23	17800	28.6	0.516
²¹⁴ Bi (RaC)	3	19.7 min	7.7	1.23	13100	21.0	0.379
²¹⁴ Po (RaC')	4	164 μs	7.7	1.23	2 10 ⁻³	2.9 10 ⁻⁶	6 10 ⁻⁸

Tabla II.I. Energía potencial alfa por átomo y por bequerelio de los descendientes de vida corta del radón (ICRP 50).

Se define la energía potencial alfa para un átomo del descendiente j, E_{pj} (julio/átomo), como la suma de energías alfa emitidas durante la desintegración de este átomo hasta alcanzar el radionucleido ²¹⁰Pb (Tabla II.I). La energía potencial alfa por Bq del radionucleido j, de constante de desintegración λ_j, es E_{aj} (julio/Bq) = E_{pj}/λ_j. La concentración en energía potencial alfa de una mezcla de descendientes de radón en el aire se define como la suma de la energía potencial alfa de todos los átomos de descendientes por unidad de volumen. Así, la concentración en energía potencial alfa de una mezcla de concentraciones de descendientes de radón en el aire, C_j (Bq m⁻³), es:

$$C_p (\text{J/m}^3) = \sum_j C_{pj} = \sum_j E_{aj} C_j \quad (\text{II.1})$$

La unidad de la concentración en energía potencial alfa, C_p, en el SI es el J m⁻³, sin embargo, es habitual expresarlo en su unidad tradicional, el Working Level (WL). Se define 1 WL = 2.08 10⁻⁵ J m⁻³ como la concentración en energía potencial alfa de una mezcla de descendientes de radón en el aire que se encuentra en equilibrio con una concentración de radón de 3700 Bq m⁻³. De esta manera la relación entre las unidades es:

$$C_p (\text{WL}) = \frac{C_{eq} (\text{Bq/m}^3)}{3700} \quad (\text{II.2})$$

La concentración en energía potencial alfa, C_p, se puede expresar en términos de concentración equivalente en equilibrio, C_{eq}, del radón. La C_{eq} de una mezcla de descendientes de radón en el aire que no están en equilibrio se define como la concentración de radón en equilibrio radiactivo con sus descendientes que tiene la misma concentración en energía potencial alfa, C_p, que la mezcla en desequilibrio. Esta definición lleva a las siguientes expresiones:

$$C_{eq} = \sum_j k_{pj} C_j \quad (\text{II.3})$$

donde $k_{pj} = \frac{E_{pj}}{\lambda_j} / \sum \frac{E_{pj}}{\lambda_j}$ es la contribución en energía potencial alfa del descendiente j.

Tomando los valores que se indican en la tabla II.I, se obtiene:

$$C_{eq}(\text{Bq}/\text{m}^3) = 0.105 C_{Po-218} + 0.516 C_{Pb-214} + 0.379 C_{Bi-214} + 610^{-8} C_{Po-214} \quad (\text{II.4})$$

La relación entre la concentración de un descendiente, C_j , y la concentración de radón, C_0 , se expresa introduciendo el nivel de equilibrio del radionucleido j:

$$k_j = \frac{C_j}{C_0} \quad (\text{II.5})$$

Como consecuencia se puede definir el factor de equilibrio F, que relaciona la concentración equivalente en equilibrio, C_{eq} , y la concentración de radón, C_0 :

$$F = \frac{C_{eq}}{C_0} \quad (\text{II.6})$$

Este factor caracteriza el desequilibrio entre una mezcla de descendientes de radón y el radón en términos de energía potencial alfa.

Otra magnitud de gran interés en el campo de los estudios del radón es la fracción libre, que define la fracción de la concentración de descendiente no adherido a partículas de aerosol (C_j^f) con el total de actividad de este descendiente (C_j). En el marco de la dosimetría del radón, es útil expresar la concentración de descendientes libres del radón según la fracción libre, f_p , que se calcula según la siguiente expresión:

$$f_p = \frac{C_{eq}^f}{C_{eq}} \quad (\text{II.7})$$

Se puede definir la inhalación en energía potencial alfa, I_p , de una persona por la inhalación de una mezcla de descendientes durante un periodo de tiempo definido. Si v ($\text{m}^3 \text{h}^{-1}$) es la tasa de respiración media durante el periodo de cálculo, la inhalación en energía potencial alfa se relaciona con la exposición en energía potencial alfa E_p (Jm^{-3}h) según la expresión I_p (J) = $v E_p$.

En la estimación de la dosis radiológica, es importante la definición de la exposición en actividad, E_a . Se define la exposición en actividad durante el tiempo de exposición como la concentración en actividad a la que ha estado sometido el individuo durante dicho periodo de tiempo ($\text{Bq m}^{-3} \text{h}$). La exposición en energía potencial alfa, E_p , puede expresarse en unidades del SI o en la unidad antigua, WLM (working level month), que corresponde a la exposición de 1 WL durante un periodo de trabajo de

referencia de 1 mes (2000 horas de trabajo/año o 170 horas/mes). Por definición 1 WL corresponde con una concentración equivalente en equilibrio de 3700 Bq m^{-3} , por lo que se obtiene que $1 \text{ WLM} = 3700 \text{ Bq m}^{-3} \times 170 \text{ horas} = 6.29 \cdot 10^5 (\text{Bq m}^{-3})_{\text{Ceq}} \text{ h}$.

II.3 Naturaleza de los descendientes del radón en estado libre. Mecanismos de neutralización y formación de *clusters*

La naturaleza de los descendientes del radón no adheridos a partículas de aerosol depende de los procesos atmosféricos que tienen lugar, tanto de carácter químico como físico. En este sentido es de particular interés el estudio del comportamiento del ^{218}Po al ser el primer descendiente del radón y por tener un periodo radiactivo relativamente corto, de manera que tiene una elevada proporción de átomos en estado libre.

En el instante del nacimiento del ^{218}Po , éste tiene dos electrones en exceso como consecuencia de la desintegración alfa del ^{222}Rn . Sin embargo, el átomo de ^{218}Po forma un ion positivo en el 88 % de las desintegraciones y es neutro en el 12 % restante Porstendörfer, y Mercer 1979. Este hecho se debe a que el átomo formado, durante el recorrido de retroceso, origina que algunos de sus electrones sean despedidos de sus orbitales como consecuencia de su interacción con la partícula alfa. Durante el retroceso se disipan unos 117 keV y alcanza su velocidad de equilibrio termodinámico al recorrer una distancia del orden de 100 μm en el aire en condiciones estándar (Lind 1961). Se puede estimar el tiempo transcurrido hasta alcanzar el estado de equilibrio termodinámico del orden de 10^{-10} s (Knoll 1979).

Después de su nacimiento y de alcanzar el estado de equilibrio termodinámico, el ^{218}Po puede presentar cualquiera de los siguientes procesos físico-químicos: neutralización, nucleación o formación de *clusters*, adhesión a partículas de aerosol, deposición en paredes y desintegración radiactiva. Además el ^{218}Po puede ser transportado por un proceso de convección que dependerá principalmente de la ventilación del recinto. En los siguiente subapartados se analizarán los mecanismos de neutralización y nucleación que determinan las propiedades y comportamiento de la fracción libre de los descendientes del radón, mecanismos que están íntimamente ligados al nivel de difusión del radionucleído.

La neutralización es un fenómeno complicado que normalmente envuelve a uno o más procesos. Se han observado comportamientos distintos en función del potencial de ionización de la especie del Polonio, de los compuestos químicos presentes, de la humedad relativa y de la concentración de pequeños iones.

En los subapartados siguientes se analizan los tres mecanismos de neutralización conocidos: a) recombinación con iones pequeños (II.3.1.), b) captura electrónica (II.3.2.) y c) transferencia de electrones con átomos neutros (II.3.3.). En el subapartado II.3.4 se estudiará el mecanismo de formación de *clusters* desde un punto de vista de la termodinámica clásica a pesar de ser un proceso discreto. Estos procesos influyen de forma determinante en el valor del coeficiente de difusión de la partícula radiactiva que se analiza en el subapartado II.3.5.

II.3.1 Recombinación con pequeños iones negativos

La desintegración del ^{222}Rn es responsable de la aparición de pequeños iones negativos y positivos como consecuencia del proceso de frenado que sufren el ^{218}Po y la partícula alfa resultantes. Busigin y col. 1981 postularon que la tasa de neutralización del $^{218}\text{Po}^+$ debida a la concentración de iones pequeños es proporcional a la raíz cuadrada de la concentración de radón. La concentración de iones en el aire puede obtenerse de la siguiente ecuación:

$$\frac{dC_-}{dt} = \tau C_m - \alpha C_+ C_- \quad (\text{II.8})$$

donde:

- C_- y C_+ son las concentraciones de iones - y +, respectivamente
- τ es la tasa de producción de pares de iones debidos a la desintegración del ^{222}Rn
- α es el coeficiente de recombinación para iones pequeños + y -
- C_m es la concentración de radón.

En condiciones estables y suponiendo que las concentraciones de iones + y - son iguales, la ecuación anterior queda:

$$C_- = \sqrt{\frac{\tau C_m}{\alpha}} \quad (\text{II.9})$$

de manera que siendo la tasa de neutralización del ^{218}Po , R, proporcional a la concentración de iones negativos, se obtiene:

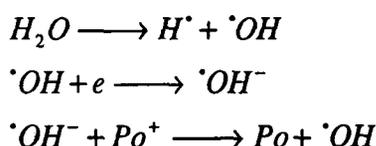
$$R = A \sqrt{\frac{\tau C_m}{\alpha}} \quad (\text{II.10})$$

Luhr 1930 determinó el valor del coeficiente de recombinación en el aire α en $1.4 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$. Glasstone y Sesonske 1967 estimaron en aproximadamente $2 \cdot 10^5$ pares de iones producidos en la desintegración de un átomo de ^{222}Rn de manera que la tasa de producción es de 0.4194 pares de iones/s. La constante de proporcionalidad A fue estimada por Chu y Hopke 1988 en $3 \cdot 10^{-5}$ de acuerdo a una comparación de su trabajo con el experimental realizado por Busigin y col. 1981. De acuerdo con estos estudios, los valores de la tasa de neutralización son poco significativos comparados con los otros dos mecanismos de neutralización en aquellos recintos donde la concentración de radón sea inferior a unos 100 kBq m^{-3} .

En las experiencias llevadas a cabo por Chu y Hopke 1988 se aprecia la proporcionalidad entre la tasa de neutralización y la raíz cuadrada de la concentración de radón. En una serie de experimentos llevado a cabo por Phillips y col. 1988 se observó que la tasa de neutralización aumentaba en gran medida entre el 0 % y 20 % de humedad relativa, de manera que el fenómeno de recombinación por pequeños iones ya no era observable a niveles de humedad superiores al 20 % como ya apuntó Busigin y col. 1981. Estos hechos llevaron a la conclusión de que debía existir otro mecanismo de neutralización que dependía del nivel de humedad relativa: la captura electrónica.

II.3.2 Captura electrónica

Se observó en distintas experiencias que los iones de polonio pueden ser neutralizados por vapor de agua o NO_2 (Goldstein y Hopke 1985). Se explicó este mecanismo de neutralización como un fenómeno de transferencia de electrones al ion a través de las moléculas de los gases traza. Los electrones necesarios para la transferencia son producidos durante el proceso de frenado del ^{218}Po . Este mecanismo puede expresarse según la siguiente reacción con radicales en el caso de tratarse de vapor de agua:



En esta hipótesis los radicales hidroxilos formados en la radiolisis del vapor de agua adquieren carga negativa al capturar un electrón y así neutralizan al ion de polonio. Una manera de validar esta hipótesis fue añadiendo un radical (etanol) capaz de reaccionar con el grupo $\bullet\text{OH}$ (Chu y Hopke 1988). Con la introducción del etanol las dos últimas etapas de la reacción anterior son dominadas por la siguiente reacción:



Con la presencia del etanol la tasa de neutralización se redujo a valores del orden de magnitud de la recombinación por pequeños iones negativos como se observa en la tabla II.II.

$[\text{H}_2\text{O}]$, ppm	$[\text{C}_2\text{H}_5\text{O}]$, ppm	Tasa de neutralización, s^{-1}
3035	0	47.9 ± 1.1
3976	0	47.9 ± 1.1
5980	1.30	3.21 ± 0.08
5980	3.51	3.21 ± 0.08

Tabla II.II. Tasa de neutralización del Po^+ en una atmósfera de nitrógeno humidificado con y sin etanol (Chu y Hopke 1988).

La concentración de radicales hidroxilos puede evaluarse según la siguiente ecuación:

$$\frac{d[\text{OH}]}{dt} = Q[\text{H}_2\text{O}] - k[\text{H}^\bullet][\bullet\text{OH}] \quad (\text{II.11})$$

donde Q es la constante de disociación de las moléculas de agua y k es la constante de recombinación. Suponiendo condiciones estacionarias, y $[H^*] \approx [^{\bullet}OH]$, la concentración de radicales hidroxilo se puede calcular según:

$$[^{\bullet}OH] = \sqrt{\frac{Q[H_2O]}{k}} \quad (II.12)$$

Puesto que la concentración de radicales hidroxilo es proporcional a la raíz cuadrada de la concentración de vapor de agua, la representación gráfica de la tasa de neutralización frente a la raíz cuadrada de la concentración de vapor de agua y frente a la concentración de NO_2 deberían presentar la misma forma. Esta hipótesis quedó comprobada por Chu y Hopke 1988.

Del análisis de este mecanismo de neutralización se puede concluir que es un mecanismo de mayor relevancia que la recombinación de iones en los ambientes normales de recintos. Los valores obtenidos en las rasas de neutralización dan lugar a un tiempo medio de neutralización de algunos milisegundos.

II.3.3 Transferencia de electrones con átomos neutros

Otro mecanismo por el cual los iones de ^{218}Po pueden ser neutralizados es el fenómeno de transferencia de electrones en la colisión del ion con moléculas neutras. Sin embargo, de acuerdo con los argumentos de Busigin y col. 1981, este mecanismo es muy poco probable debido al bajo potencial de ionización del átomo de ^{218}Po , 8.34 eV, inferior al de las moléculas de la mayoría de los gases atmosféricos. Como alternativa a este modelo se planteó que los iones de $^{218}Po^+$ reaccionan químicamente con el oxígeno presente en el aire para formar iones de $^{218}PoO_2^+$. Estos se forman muy rápidamente después de alcanzarse la velocidad de equilibrio termodinámico del ion de Polonio y al tener un potencial de ionización que está comprendido entre 10.35 eV y 10.53 eV (Goldstein y Hopke 1985) pueden adquirir un electrón de las moléculas con potenciales de ionización inferiores (por ejemplo, moléculas de NO_2 cuyo potencial de ionización es de 9.79 eV). Este mecanismo de neutralización es mucho más rápido que el de captura electrónica debido a que los electrones se transfieren de una manera directa en su colisión. Por comparación con los resultados experimentales de la tasa de neutralización, Chu y Hopke 1988 dedujeron que aproximadamente el 90 % de las colisiones producían una transferencia de electrón.

En el trabajo de Chu y Hopke 1988 se observa el mismo comportamiento de la tasa de neutralización para otras moléculas distintas del NO_2 . Para estas moléculas los coeficientes de transferencia son mucho menores, estimándose en un 3 % para el NH_3 y en un 1 % para el $n-C_5H_{12}$. Esta disminución drástica de los coeficientes de transferencia se debe a que hay menos energía disponible para la transferencia del electrón según se determina con los potenciales de ionización (10.2 eV para el NH_3 y 10.35 eV para el $n-C_5H_{12}$).

II.3.4 Nucleación o formación de clusters

En la atmósfera se presentan ciertas sustancias químicas capaces de aumentar el tamaño del ion de $^{218}\text{Po}^+$ o $^{218}\text{PoO}^+$ mediante el mecanismo que se denomina nucleación. Este mecanismo aparece de forma paralela a los mecanismos de neutralización que se han visto en los apartados anteriores.

La molécula más importante que favorece la producción del fenómeno de nucleación es la de H_2O . A pesar de que el fenómeno de la nucleación es discreto, es usual su interpretación a través de la teoría termodinámica clásica de la formación de gotas que se presenta a continuación de forma simplificada para mostrar los parámetros influyentes en el proceso.

La energía libre de formación de un *cluster* de H_2O de tamaño r se puede obtener con la siguiente expresión (Bricard 1977):

$$\Delta G = -\frac{4\pi r^3}{3m_{\text{H}_2\text{O}}} \rho kT \ln \frac{p}{p_s} + 4\pi r^2 \sigma + \frac{Q^2}{2} \left(1 - \frac{1}{\epsilon}\right) \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{r_0}\right) \quad (\text{II.13})$$

donde $m_{\text{H}_2\text{O}}$ es la masa de una molécula de agua, ρ es la densidad del *cluster*, p es la presión parcial del vapor de agua en el ambiente, p_s es la presión de vapor a la cual se equilibra la evaporación y la condensación en una superficie plana de agua a temperatura T (p/p_s es el grado de saturación), k es la constante de Boltzmann, T es la temperatura absoluta, σ es la tensión superficial del *cluster*, Q es la tasa de formación de iones en el aire, ϵ es la constante dieléctrica del *cluster* y r_0 es el radio de un átomo radiactivo libre.

El primer término de la derecha de la ecuación tiene en cuenta el calor latente de condensación, el segundo término contabiliza la energía superficial de la gota líquida. El último término aparece sólo cuando la nucleación se produce alrededor de un ion y describe el cambio en la energía del campo eléctrico por la presencia de agua. La figura II.2 muestra de forma esquemática el valor de ΔG en función del radio del *cluster* r , para un grado de saturación inferior a 1 (humedad relativa inferior al 100 %), tanto para *cluster* cargados como neutros.

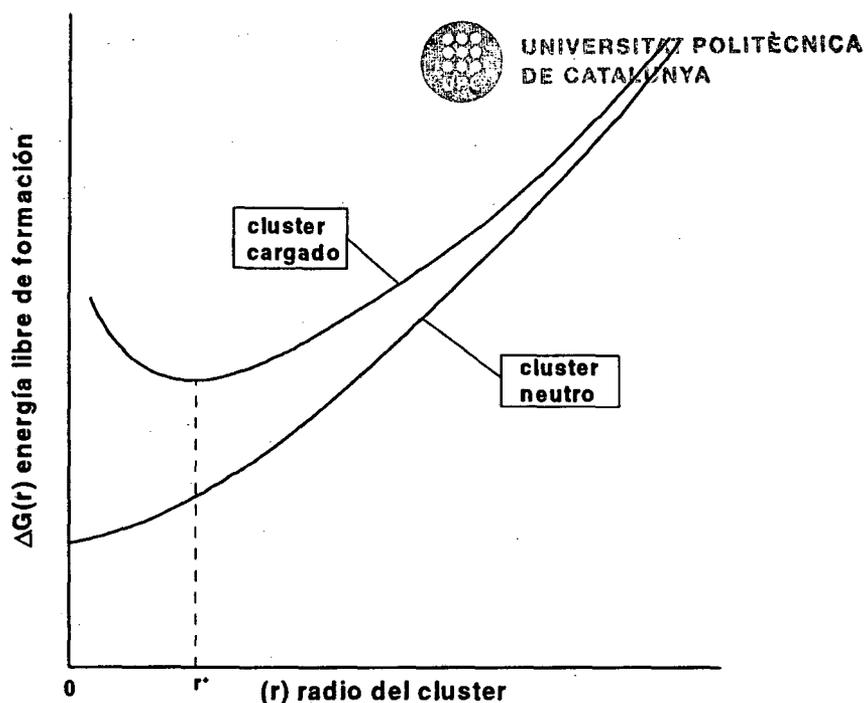


Fig. II.2. Representación esquemática de la energía de formación de clusters cargados y neutros en función de su radio. Los clusters cargados pueden ser estables alrededor del radio r^* (Raes 1985).

La figura anterior muestra cómo la formación de *clusters* neutros de H_2O es termodinámicamente imposible ya que implicaría un incremento continuo de la energía libre de formación. Por el contrario, los iones siempre adquieren algunas moléculas de agua y crecen hasta el tamaño r^* . A este tamaño, el *cluster* se encuentra en equilibrio estable con el vapor de agua de manera que el número de moléculas que condensa en la superficie del *cluster* iguala al número de moléculas que se evaporan. El crecimiento espontáneo de estos *clusters* cargados es imposible. El tamaño del *cluster* cargado puede obtenerse resolviendo la siguiente ecuación:

$$\frac{d\Delta G}{dr} = 0 \quad (\text{II.14})$$

Raes 1985, usando la teoría cinética de los gases estableció que para humedades relativas comprendidas entre 10 % y 100 % el tiempo de formación del *cluster* se encuentre comprendido entre $5 \cdot 10^{-6}$ s y $5 \cdot 10^{-7}$ s. Como consecuencia es lógico llegar a la conclusión que la formación de *clusters* estables se producirá en la mayoría de los procesos previamente a la neutralización. Cuando se produce la neutralización del *cluster*, este se evapora y finalmente se convertirá en un átomo neutro.

Hasta este momento se ha descrito el fenómeno de la agrupación de moléculas de H_2O alrededor de un ion, sin embargo, si existe una segunda especie condensable amén del H_2O , los *clusters* pueden adquirir propiedades totalmente distintas. En el trabajo realizado por Raes 1985 se detalla la teoría de formación de *clusters* en una mezcla de $H_2O-H_2SO_4$. Las propiedades que se derivan pueden aplicarse también a otras especies condensables, como mínimo de forma cualitativa, como por ejemplo HNO_3 , vapores orgánicos, etc. La conclusión principal del estudio muestra que el fenómeno de

neutralización tiene una gran influencia en el mecanismo de formación de *clusters*. Sin embargo, y de forma contraria a lo que sucedía en la agrupación de moléculas de agua pura, la neutralización no siempre llevará a la evaporación del *cluster*. Cuando un *cluster* cargado es neutralizado con un tamaño superior al valor que corresponde al punto máximo de ΔG en la superficie de los *clusters* neutros, aquel crecerá hacia una gota de aerosol.

II.3.5 El coeficiente de difusión de los descendientes del radón en estado libre

En el rango del espectro dimensional de la fracción libre de descendientes del radón (0.5 nm - 5 nm) el parámetro que caracteriza la dinámica de las partículas es el coeficiente de difusión, D . Es por tanto de interés el conocimiento de la relación entre el tamaño de la partícula y su coeficiente de difusión.

El coeficiente de difusión de las partículas de aerosol se expresa comunmente con la ecuación de Einstein:

$$D = \frac{kTC}{3\pi\mu d_p} \quad (\text{II.15})$$

donde d_p es el diámetro de la partícula, C es el factor de corrección de Cunningham obtenido por Friedlander 1977 como:

$$C = 1 + \frac{\lambda}{d_p} \left[2.514 + 0.8 \exp\left(-\frac{0.55 d_p}{\lambda}\right) \right] \quad (\text{II.16})$$

donde d_p es el diámetro de la partícula en cm, λ es el recorrido libre medio de las moléculas del gas ($0.646 \cdot 10^{-5}$ cm), k es la constante de Boltzmann ($1.38 \cdot 10^{-16}$ erg K^{-1}), T es la temperatura en K y μ es la viscosidad del aire ($1.83 \cdot 10^{-4}$ g cm s^{-1} a 20 °C y 1 atm).

Sin embargo, las ecuaciones anteriores sobrestiman el coeficiente de difusión en el tamaño comprendido entre 0.5 nm y 0.75 nm donde no era posible disponer de datos para el ajuste de las ecuaciones en la época de su obtención. Este hecho se reconoció en el trabajo de Holub y Knutson 1987 en el que el coeficiente de difusión del átomo de ^{222}Rn fue establecido por Hirst y Harrison 1939 en el valor de $0.12 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$, mientras que las ecuaciones estiman el coeficiente de difusión en el valor de $0.20 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ para un diámetro de 0.5 nm. El problema quedó parcialmente resuelto cuando para los diámetros comprendidos entre 0.5 nm y 2 nm se aplicó la teoría cinética de los gases en la determinación de su coeficiente de difusión (Loeb 1961, Porstendörfer 1968, Raabe 1969). Loeb 1961 obtuvo una expresión del coeficiente de difusión a partir de la teoría cinética considerando colisiones de dos cuerpos (*clusters* y moléculas de gas), con la hipótesis de que los *clusters* ejercen una presión parcial en el gas:

$$D = \frac{0.815 V_r}{3\pi s^2 N} \left[\frac{M+m}{M} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (\text{II.17})$$

donde V_r es la raíz cuadrada de la velocidad cuadrática media del gas ($5.02 \cdot 10^4 \text{ cm s}^{-1}$ para el aire a $20 \text{ }^\circ\text{C}$), N es la concentración de moléculas de gas ($2.51 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ para el aire a 760 mm Hg y $20 \text{ }^\circ\text{C}$), s es la suma del radio de la molécula de gas ($0.185 \cdot 10^{-7} \text{ cm}$ para el aire) y del cluster, M es el peso molecular del cluster y m es el del gas (28.9 g/mol para el aire). De los resultados experimentales, Loeb 1961 llegó a la conclusión de que los clusters cargados no satisfacían la ecuación anterior como consecuencia de la polarización de las moléculas del gas.

En la figura II.3 se pueden comparar las ecuaciones de Einstein-Cunningham y la ecuación de Loeb sin el factor de masa $((M+m)/m)^{0.5}$. Las ecuaciones de Einstein-Cunningham se desvían de la teoría cinética en el rango de diámetros inferiores a 1.75 nm . Para poder hacer uso de las ecuaciones de Einstein-Cunningham para todo el espectro dimensional se puede utilizar un factor de corrección semi-empírico de manera a ajustar las ecuaciones. Este factor de corrección fue obtenido por Ramamurthi y Hopke 1989 realizando la siguiente sustitución

$$d_p^* = d_p (1 + 3 \exp(-2.2010^7 d_p)) \quad (\text{II.18})$$

para el valor de d_p (en cm) en la ecuación II.16 que expresa el factor de corrección de Cunningham (C).

Para la determinación del coeficiente de difusión de los *clusters* cargados Chapman y Cowling 1958 obtuvieron la siguiente ecuación:

$$D = \frac{0.815 V_r \left[\frac{M+m}{M} \right]^{\frac{1}{2}}}{3\pi s^2 N \left[1 + \frac{0.402 e^2 a^3}{4s^2 kT} \right]} \quad (\text{II.19})$$

donde a es el radio de colisión molecular para el aire ($0.185 \cdot 10^{-7} \text{ cm}$) y e es la carga elemental ($1.6 \cdot 10^{-19} \text{ C}$). Esta relación ha sido representada en la figura II.3.

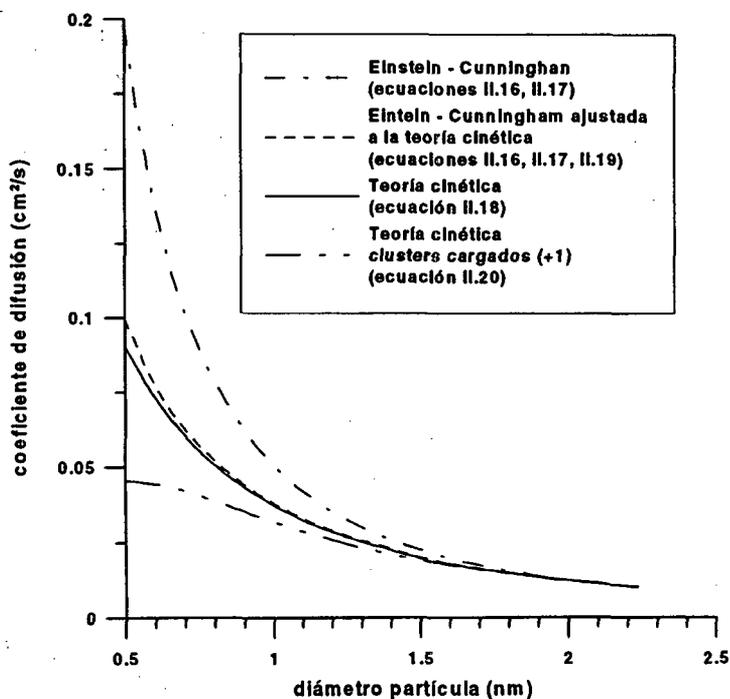


Figura II.3. Coeficiente de difusión para partículas de tamaño comprendido entre 0.5 nm y 2 nm. (Ramamurthi 1989)

Ciertamente, los valores del coeficiente de difusión observados experimentalmente varían entre $0.027 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ y $0.096 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ (Fontan y col. 1969, Thomas y Leclare 1970, Kotrappa y col. 1976, Porstendörfer y Mercer 1979, Raghunat y kotrappa 1979, Billard y col. 1981, Frey y col. 1981, Busigin y col. 1982, Goldstein y Hopke 1985).

En la obtención de los distintos valores del coeficiente de difusión se ha visto en los apartados anteriores que el nivel de humedad relativa en el aire es de gran influencia. Algunos autores consideran que las moléculas de agua se fijan alrededor del ion de manera que el coeficiente de difusión disminuye con la humedad relativa (Raes y col. 1985). Otros autores consideran que al incrementar la tasa de neutralización con la humedad relativa también se produce un incremento en el coeficiente de difusión al ser el cluster neutro (Goldstein y Hopke 1985).

Más recientemente, Porstendörfer y col. 1995 midieron el coeficiente de difusión de un cluster de 0.68 nm para un rango de humedades de 2 % a 70 %. El valor obtenido fue un valor constante de $0.11 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$, en contradicción con las dos teorías precedentes.

Se puede concluir en este apartado que no existe ningún coeficiente de difusión estándar para la fracción libre de los descendientes del radón, los valores obtenidos en la literatura corresponden a las condiciones específicas de la medida. Así, parece inapropiada la utilización de un único coeficiente de difusión para la fracción libre y es de interés la determinación de su espectro dimensional, que permite determinar el espectro del coeficiente de difusión necesario para la estimación de la dosis utilizando los modelos dosimétricos de las vías respiratorias, tal como se analizará en el apartado II.9.

II.4 Mecanismo de adhesión a partículas de aerosol

Además de las rápidas reacciones de neutralización y nucleación, los productos de desintegración del radón se adhieren a partículas de aerosol atmosférico cuyo espectro dimensional puede caracterizarse por la concentración de partículas en el intervalo dimensional Δd de diámetro d , $Z(d) \cdot \Delta d$. El espectro dimensional en actividad del descendiente, $C_j(d)$, y el espectro dimensional en número $Z(d)$ son distintos como consecuencia de que el proceso de adhesión depende del tamaño de la partícula.

El espectro dimensional en actividad del producto de desintegración j , $C_j^a(d)$ puede calcularse con la siguiente expresión:

$$\frac{dC_j^a(d)}{dt} = \beta(d)Z(d)C_j^f + (1-R_{j-1}(d))\lambda_j C_{j-1}^a(d) - \lambda_j C_j^a(d) \quad (\text{II.20})$$

donde $\beta(d)Z(d)C_j^f$ es el término de adhesión, $(1-R_{j-1}(d))\lambda_j C_{j-1}^a(d)$ es el término fuente y $\lambda_j C_j^a(d)$ es el término de desintegración. C_j^f es la concentración de la fracción libre del descendiente j que se considera de tamaño único, R_j es el factor de retroceso (apartado II.5), y $\beta(d)$ es el coeficiente de adhesión que expresa la probabilidad de adhesión a la superficie de una partícula de diámetro d . Suponiendo que los procesos de deposición, ventilación y coagulación no son significativos y R_j no es función del tamaño de la partícula, el espectro dimensional en actividad relativa se puede describir en condiciones estacionarias según la siguiente ecuación obtenida por Porstendörfer 1969:

$$\frac{C_j^a(d)}{C_j^a} = \beta(d) \frac{Z(d)}{X} \quad (\text{II.21})$$

Esta ecuación describe la relación entre el espectro dimensional en actividad y el espectro dimensional en número de partículas del aerosol atmosférico, donde:

$$C_j^a = \int_0^\infty C_j^a(d) \, dd \quad (\text{II.22})$$

y

$$X = \int_0^\infty \beta(d)Z(d) \, dd \quad (\text{II.23})$$

es la tasa de adhesión que expresa la probabilidad de adhesión por unidad de tiempo de los radionucleidos libres a una partícula de aerosol atmosférico de concentración de partículas:

$$Z = \int_0^\infty Z(d) \, dd \quad (\text{II.24})$$

De las expresiones anteriores se observa que la diferencia entre el espectro dimensional en número de partículas y el espectro dimensional en actividad se caracteriza por el coeficiente de adhesión, $\beta(d)$, necesario para determinar $C_j^a(d)$ cuando

$Z(d)$ es conocida. La mayoría de las teorías sobre el proceso de adhesión, se le considera como un proceso de difusión bajo la acción de fuerzas electrostáticas y de las leyes cinéticas de los gases. Los resultados experimentales obtenidos en las investigaciones de Lassen y Rau 1960, Porstendörfer 1968b, Porstendörfer y Mercer 1978 y Porstendörfer y col. 1979 se ajustan correctamente con el modelo de difusión y pueden expresarse según la siguiente ecuación:

$$\beta(d) = \frac{2\pi D_o d}{8D_o + \frac{d}{dv_o + 2\delta_o}} \quad (\text{II.25})$$

en donde se asume que las fuerzas electrostáticas no son significativas y que la probabilidad de que se adhiera el radionucleido a la partícula de aerosol es del 100 % cuando se produce el contacto. D_o es el coeficiente de difusión del *cluster* (del orden de $6 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$), v_o es la velocidad de equilibrio térmico (del orden de $1.72 \cdot 10^4 \text{ cm s}^{-1}$), y $\delta_o = d/2 + l_o$ (Fuchs 1963) con $l_o = 4.9 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$ (Porstendörfer 1968a) es el recorrido libre medio de un producto de desintegración libre.

La ecuación anterior (II.25) tiene dos límites:

a) para partículas grandes ($d > 1 \mu\text{m}$), donde el proceso de adhesión se determina considerando sólo las leyes de difusión:

$$\beta(d) = 2\pi D_o d \quad (\text{II.26})$$

b) para partículas pequeñas ($d < 100 \text{ nm}$), donde el proceso de adhesión se determina por la teoría cinética de los gases y es proporcional a la superficie de la partícula:

$$\beta(d) = \frac{1}{4} \pi v_o d^2 \quad (\text{II.27})$$

Se define el coeficiente medio de adhesión como $\beta = X/Z$. Este coeficiente ha sido obtenido por diversos autores en función de la concentración de partículas (Mohnen 1969, Porstendörfer 1969, Kawano y col. 1970, Ikebe y col. 1970, Porstendörfer y Mercer 1978b, Porstendörfer y col. 1987). Los resultados pueden simplificarse para atmósferas en recintos cerrados sin fuentes de aerosol en un valor de $5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3 \text{ h}^{-1}$ y para atmósferas exteriores en un valor del orden de $2 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3 \text{ h}^{-1}$.

II.5 Mecanismo de desprendimiento por retroceso

El factor de retroceso, R , define la probabilidad de que un descendiente del radón adherido a una partícula de aerosol se desprenda como consecuencia de la energía liberada en la desintegración. El factor de retroceso en una desintegración beta es despreciable; sin embargo, en la desintegración alfa del ^{218}Po , el ^{214}Pb formado tiene una energía inicial de retroceso de 117 keV. Esta energía es elevada comparada con la energía potencial de una molécula (1 eV) adherida a la superficie. La probabilidad de

escapar por retroceso depende del poder de frenado en el material del aerosol y del tamaño de la partícula. Mercer 1976 calculó el factor de retroceso en 0.81 y Porstendörfer y col. 1987 evaluó este factor en 0.50 ± 0.15 para recintos cerrados.

II.6 Mecanismo de deposición en superficies

En recintos cerrados el mecanismo de deposición en las paredes y el mobiliario es un parámetro de especial importancia ya que es el mecanismo que más influye en la eliminación de partículas radiactivas en el aire.

En general, la deposición seca de las partículas de aerosol en superficies se determina por los procesos físicos de sedimentación por gravedad, impacto por fuerzas inerciales, intercepción y difusión Browniana.

Los mecanismos de deposición en un aire en régimen turbulento puede caracterizarse por dos etapas:

(1) transporte hacia la superficie, caracterizado por el parámetro de difusión turbulenta, D_T ,

(2) precipitación de la partícula en la superficie, función del diámetro de la partícula y de la estructura y rugosidad de la superficie.

El flujo de partículas hacia una superficie en condiciones estacionarias puede determinarse por la siguiente ecuación (Friedlander y Johnston 1957, Fuchs 1964):

$$\phi(d) = [D_T(z) + D_p(d)] \frac{dZ(z,d)}{dz} + v_s(d) Z(z,d) \quad (\text{II.28})$$

donde $Z(z,d)$ es la concentración de partículas de diámetro d a una distancia z de la superficie. En un flujo turbulento la fracción de flujo debida a la difusión turbulenta $D_T(z) dZ/dz$ es mucho mayor a la correspondiente fracción debida a la difusión Browniana $D_p(d) dZ/dz$ y a la sedimentación $v_s(d) Z(d,z)$.

El mecanismo de deposición se puede caracterizar introduciendo el parámetro de velocidad de deposición (Chamberlain 1955):

$$v_g = \frac{\phi(d)}{Z(z,d)} \quad (\text{II.29})$$

donde $\phi(d)$ es el número de partículas de diámetro d depositadas por unidad de superficie y tiempo. Es usual normalizar la velocidad de deposición con la velocidad de fricción u^* :

$$v_g^+ = \frac{v_g}{u^*} \quad (\text{II.30})$$

donde u^* es un parámetro de la difusión turbulenta, $D_T(z) = Ka u^* z$ (Ka es la constante de Von Karman), que depende del perfil de velocidad del aire y de la rugosidad de la superficie.

Como ya se ha indicado la deposición en superficies es el parámetro más importante de reducción de la concentración de descendientes de radón en recintos cerrados. Si S es la superficie del recinto disponible para la deposición, la tasa de deposición es $C_j v_g S$ ($Bq s^{-1}$). La actividad total del descendiente j en el aire en un recinto de volumen V es $C_j V$, entonces la probabilidad de deposición por unidad de tiempo es:

$$q = v_g \frac{S}{V} \quad (II.31)$$

suponiendo que la concentración es constante en todo el recinto.

Se puede obtener una estimación de las velocidades de deposición para los descendientes adheridos (v_g^a) y libres (v_g^f) a partir de los resultados experimentales obtenidos por varios autores (Porstendörfer y col. 1978b, Ahmed 1979, Chamberlain 1966, Möller 1970, Clough 1973, Shamel 1973, Shamel y col. 1974, Little y Wiffen 1977, Horbert y col. 1976 y Butterweck 1991). Para un recinto cerrado los niveles de velocidad son del orden de 200 a 600 $m h^{-1}$ que corresponden a velocidades de fricción u^* de 20-60 $m h^{-1}$ (Ahmed 1979), suponiendo la rugosidad del tipo de papel. Utilizando una velocidad de fricción de 40 $m h^{-1}$ se obtienen unas velocidades de deposición medias de valor $v_g^f = 2 m h^{-1}$ y $v_g^a = 0.02 m h^{-1}$.

II.7 Mecanismo de renovación del aire

Se define la renovación del aire de un recinto cerrado como el proceso por el cual se reemplaza este aire. El nivel de renovación del recinto depende de las diferencias de presión causadas por la intensidad del viento y por las diferencias de densidad del aire entre el exterior y el interior del recinto. Estas corrientes de aire son las responsables de las infiltraciones de aire procedente del subsuelo y son posibles causas de fluctuaciones de la concentración de radón en interiores como se ha medido experimentalmente en el trabajo de Ortega y Vargas 1996.

La tasa de renovación del aire de un recinto cerrado se determina según la siguiente expresión:

$$v = \frac{Q}{V} \quad (II.32)$$

donde Q es el caudal de infiltración de aire y V es el volumen del recinto. Los niveles de la tasa de renovación varían entre 0.1 h^{-1} y 2 h^{-1} para una ventilación normal y 20 h^{-1} cuando las ventanas están abiertas, siendo un valor típico del orden de 0.55 h^{-1} (Knutson 1988).

II.8 Modelo del comportamiento de los descendientes del radón en el aire

En el modelo del comportamiento de los descendientes de vida corta del radón que se presenta, se distinguen diversos parámetros para la caracterización de la fracción libre (descendientes del radón en estado libre) y la fracción adherida (descendientes del radón adheridos a partículas de aerosol) de manera que el modelo es de dos grupos. Las ecuaciones para el descendiente j son:

$$\frac{dC_j^{if}}{dt} = vC_j^{ef} + \lambda_j C_{j-1}^{if} + \lambda_j R_{j-1} C_{j-1}^{ia} - (\lambda_j + X + q^f + v) C_j^{if} \quad (\text{II.33})$$

$$\frac{dC_j^{ia}}{dt} = vC_j^{ea} + \lambda_j (1 - R_{j-1}) C_{j-1}^{ia} + X C_j^{if} - (\lambda_j + q^a + v) C_j^{ia} \quad (\text{II.34})$$

donde C_j^{ef} y C_j^{ea} son las concentraciones del descendiente j (libres y adheridos respectivamente) en el exterior del recinto. Suponiendo que la contribución de la concentración del descendiente libre en el exterior no es significativa en el modelo del recinto interior, se obtienen las siguientes ecuaciones en estado estacionario:

$$C_j^{if} = \frac{\lambda_j C_{j-1}^{if} + R_{j-1} \lambda_j C_{j-1}^{ia}}{v + \lambda_j + q^f + X} \quad (\text{II.35})$$

$$C_j^{ia} = \frac{vC_j^{ea} + X C_j^{if} + (1 - R_{j-1}) \lambda_j C_{j-1}^{ia}}{v + \lambda_j + q^a} \quad (\text{II.36})$$

Porstendörfer 1984 y Knutson 1988 llevaron a cabo simulaciones para determinar la influencia de parámetros específicos del recinto (tasa de ventilación, tasa de exhalación), así como de diversos parámetros relacionados con las características de los aerosoles (tasa de adhesión, tasa de deposición) sobre el factor de equilibrio y la fracción libre en viviendas. En los resultados de las simulaciones se aprecia la correlación de tipo inversa que existe entre la fracción libre y el factor de equilibrio.

Así mismo se han realizado estudios de correlación con datos experimentales. En todos estos trabajos (Stranden y Strand 1986, Tokomani y col. 1996 y Huet 1999) se propuso una relación potencial entre la fracción libre y el factor de equilibrio de la forma:

$$f_p = a F^b \quad (\text{II.37})$$

donde los coeficientes a y b se ajustan con los datos experimentales. En la tabla II.3 se presentan los resultados experimentales obtenidos para distintos recintos.

Autor	Recinto	Correlación
BEIR IV (datos de Reineking)	Viviendas	$f_p=0.0177 F^{2.50}$
Stranden y Strand 1986	Viviendas	$f_p=0.0172 F^{2.38}$
	Minas	$f_p=0.0160 F^{1.17}$
	Estaciones hidroeléctricas	$f_p=0.0455 F^{1.25}$
Tokomani y col. 1996	Viviendas	$f_p=0.0217 F^{1.07}$
Huet 1999	Viviendas	$f_p=0.0195 F^{1.47}$

Tabla II.3. Correlación entre la fracción libre y factor de equilibrio obtenida de diferentes resultados experimentales.

II.9 Estimación de la dosis mediante el uso de modelos dosimétricos de la ICRP de las vías respiratorias

La dosis en los tejidos del tracto respiratorio, debida a la inhalación de los descendientes del radón, no se puede medir de forma directa y se debe estimar modelizando la secuencia de sucesos implicados: inhalación, deposición, transporte y limpieza, retención y desintegración. Los modelos dosimétricos desarrollados incorporan la simulación de los distintos procesos mediante un sistema compartimental caracterizado por una serie de parámetros. Estos parámetros se pueden clasificar en dos grandes grupos: parámetros relativos a la caracterización del aerosol y los relacionados con el individuo.

En este trabajo interesan los parámetros relacionados con la caracterización del aerosol y en especial su espectro dimensional. Como ya se ha indicado caben distinguir dos regiones del espectro dimensional de la actividad de los descendientes del radón: la moda de los descendientes en estado libre y la moda de acumulación. Es por tanto de interés determinar la fracción de cada una de las modas, así como su contribución a la dosis, de manera a poder estimar la dosis absorbida en la región bronquial. Se parte de la siguiente expresión:

$$D_B = X_p [f_p D_u + (1-f_p) D_a] \quad (\text{II.38})$$

donde f_p es la fracción libre, D_u y D_a (mGy por ($\text{Bq m}^{-3} \text{ h}$ o WLM)) son los valores de dosis por unidad de exposición de energía potencial alfa de la fracción libre y adherida respectivamente, y X_p ($\text{Bq m}^{-3} \text{ h}$ o WLM) es la exposición en energía potencial alfa de los descendientes del radón que se obtiene con la siguiente expresión:

$$X_p = C_{eq} t = F C_{Rn-222} t \quad (\text{II.39})$$

donde t es el tiempo de exposición en horas. Estas ecuaciones pueden ser expresadas en unidades antiguas teniendo en cuenta que una exposición de $1.57 \cdot 10^{-6}$ WLM corresponde a una exposición de energía potencial alfa de los descendientes de $1 \text{ Bq m}^{-3} \text{ h}$ como se determinó en el apartado II.2.

Los valores de D_u y D_a dependen del modelo dosimétrico utilizado y de los parámetros de entrada relacionados con las características del aerosol y de cada persona. Para cuantificar estos valores se presenta en la figura II.4 las dosis medias absorbidas en las regiones bronquiales y alveolares para distintos tamaños de los descendientes en estado libre y adheridos a partículas de aerosol utilizando el modelo dosimétrico presentado por James 1988. En la figura se aprecia la elevada carga dosimétrica de los descendientes en estado libre frente a los adheridos como consecuencia de su deposición en una región más radiosensible. Asimismo se aprecia la influencia del tipo de respiración, ya sea oral o nasal, en la carga dosimétrica de la fracción libre.

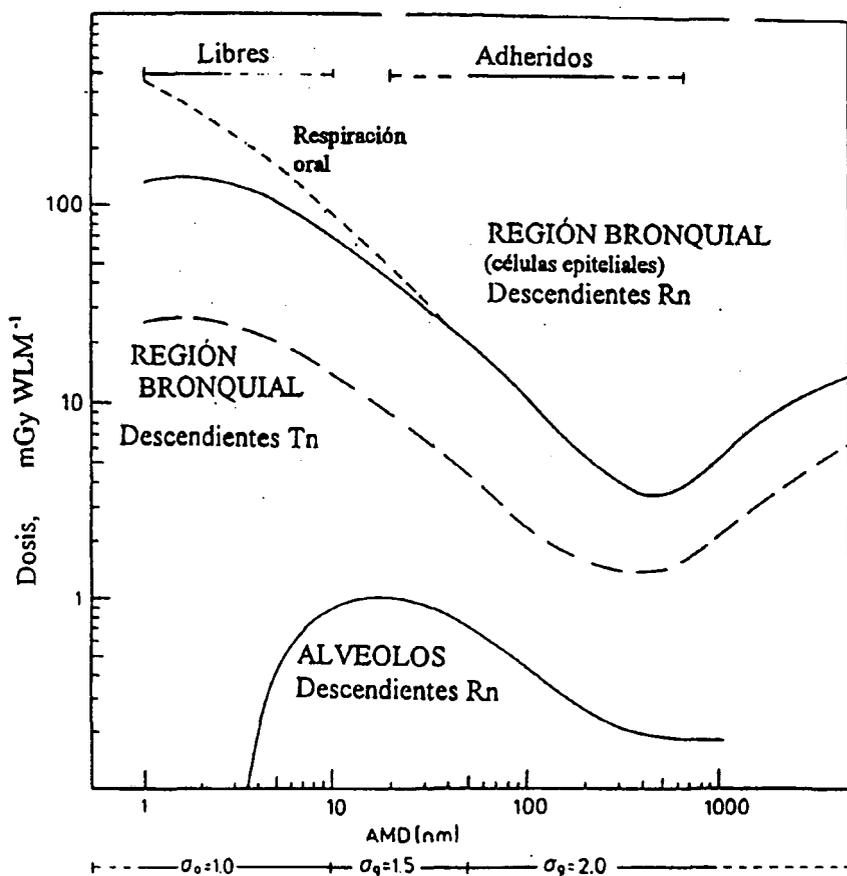


Fig. II.4. Dosis medias absorbidas sobre células epiteliales en las regiones bronquial y alveolar (James 1988).

A continuación se estiman los factores de conversión a dosis mediante dos modelos dosimétricos desarrollados por la ICRP. El primero de ellos corresponde a un modelo simplificado presentado en James y col. 1988a. La aplicación de este modelo dosimétrico se presenta en el trabajo de James y col. 1988b en el que se propone utilizar, para una persona en condiciones de vida estándar, un factor de conversión a dosis de la fracción libre de 140 nGy por Bq m⁻³ h, y para la fracción adherida 9 nGy por Bq m⁻³ h. Con estos valores y suponiendo un factor de ponderación de radiación alfa $w_\alpha=20$ y un factor de ponderación del tejido bronquial $w_B=0.06$ (ICRP 60) se obtiene, a partir de la

II.38, una dosis equivalente por unidad de exposición a los descendientes del radón en energía potencial alfa de:

$$E = 157 f_p + 10.8 \quad [nSv \text{ por } Bq m^{-3} h] \quad (II.40)$$

Si esta expresión se multiplica por el factor de equilibrio se obtiene la dosis efectiva por unidad de exposición de radón.

En base al análisis llevado a cabo por James y col. 1988b, se aconseja un factor de conversión a dosis efectiva en la región bronquial por unidad de exposición a descendientes del radón siempre superior a 16 nSv por Bq m⁻³ h (10 mSv por WLM) para ambientes domésticos cuyo factor de equilibrio suele ser inferior a 0.5. Este valor de dosis superior a 10 mSv por WLM estimado para exposiciones domésticas es sustancialmente superior a los 5 mSv por WLM (8.5 nSv por Bq m⁻³ h) obtenido de los estudios epidemiológicos, adoptado por la UNSCEAR, y comúnmente utilizado en los cálculos de dosis.

En el proyecto de investigación RARAD de la Unión Europea, el grupo de la NRPB realizó un estudio en el que se describe y presentan los resultados del análisis de sensibilidad de los distintos parámetros que influyen en el valor la dosis por unidad de exposición a los descendientes del radón (Marsh y Birchall 1998). En el trabajo se utilizó el modelo dosimétrico del tracto respiratorio desarrollado por la ICRP 66. Concretamente, en el análisis de sensibilidad a los parámetros relacionados con las características del aerosol, el grupo de aerosoles del proyecto RARAD recomendó un rango de valores para cada uno de los parámetros de influencia, así como su mejor estimación. Esta variación y la mejor estimación de valores fue introducida en el programa del modelo dosimétrico desarrollado por la NRPB.

Con los factores de conversión a dosis para las distintas modas del espectro dimensional propusieron la siguiente expresión, análoga a la II.40, para el cálculo de la dosis efectiva por unidad de exposición de descendientes en energía potencial alfa:

$$E_e = 67.5 f_p + 17.8 \quad [nSv \text{ por } Bq m^{-3} h] \quad (II.41)$$

La mejor estimación del valor de la fracción libre se estableció en 0.08 y el factor de equilibrio en 0.4. Al introducir estos valores en las ecuaciones anteriores se obtiene un factor de conversión a dosis efectiva por unidad de exposición a descendientes de radón del orden de 23.2 nSv por Bq m⁻³ h, valor prácticamente igual al obtenido con el primer modelo (23.4 nSv por Bq m⁻³ h).

Es de interés destacar que si bien la carga dosimétrica de la fracción libre y la fracción adherida son distintos en estos dos modelos, los valores finales del factor de conversión a dosis obtenidos con los mejores parámetros estimados son muy similares. Sin embargo, tal como se analizará en el capítulo VI, la utilización de estos modelos tiene consecuencias significativas en la evaluación de la dosis.

Finalmente, merece la pena señalar que en análisis llevado a cabo por Marsh y Birchall 1998, no se estudió la influencia de los factores de ponderación del pulmón

($w_{\text{pulmón}}$) ni de la irradiación por partículas alfa (w_{α}) puesto que se consideraron fuera del alcance de aquel estudio. Sin embargo, existe la idea de que las discrepancias entre la evaluación de la dosis por métodos epidemiológicos o mediante la utilización del modelo dosimétrico del pulmón, podría estar vinculado a la sobre valoración del factor de ponderación a la radiación alfa (Birchall y James 1994) y que este factor debería ser modificado a la baja.

II.10 Conclusiones

Se ha puesto de manifiesto la complejidad de los distintos procesos físico-químicos que llevan a considerar un amplio rango de valores de los parámetros que caracterizan a los descendientes del radón tales como el factor de equilibrio, la fracción libre y el espectro dimensional de los descendientes del radón tanto en estado libre como adherido a partículas de aerosol. Se ha prestado especial atención al interés que tiene el mayor conocimiento del espectro dimensional de los descendientes en estado libre en la posibilidad de la existencia de tres tamaños diferenciados de diámetros 0.5 nm, 0.8 nm y 1.3 nm, propuestos por otros autores en la realización de medidas experimentales. Finalmente se ha indicado la diferente carga dosimétrica que representa el espectro dimensional de los descendientes del radón en la evaluación del riesgo radiológico utilizando los modelos dosimétricos del tracto respiratorio.