

Potabilización radiológica del agua de consumo humano

CSN



Colección
Informes Técnicos
18. 2007

Potabilización radiológica del agua
de consumo humano

Colección Informes Técnicos
Referencia INT-04.14

© Copyright 2007, Consejo de Seguridad Nuclear

Edita y distribuye:

Consejo de Seguridad Nuclear

C/ Pedro Justo Dorado Dellmans, 11. 28040 Madrid, España

www.csn.es

peticiones@csn.es

Maquetación: base 12 diseño y comunicación s.l.

Impresión: ELECÉ, Industria Gráfica, S.L.

Depósito legal: M-38.294-2007

Potabilización radiológica del agua de consumo humano

Autores: Yolanda Álvaro Pilar
Antonio Baeza Espasa
Fernando Legarda Ibáñez
Alejandro Salas García

Colección
Informes Técnicos
18. 2007



Resumen

El objetivo general del estudio realizado, y del que en el presente documento se describen los aspectos más importantes de su desarrollo metodológico y de los resultados obtenidos, ha sido el desarrollar una serie de modificaciones, fácilmente incorporables a los principales tipos de procedimientos de potabilización existentes, de forma que se mejore la capacidad que éstos poseen en sus condiciones óptimas de trabajo, para producir la eliminación de los radionucleidos naturales existentes disueltos en los recursos hídricos así tratados o de los potencialmente incorporables a las aguas, para el caso de los de origen artificial, hasta valores tan próximos al 100% como sea técnicamente posible, o al menos, que se reduzca su presencia hasta niveles tales que conviertan al agua así tratada en apta para el consumo humano, tanto desde el punto de vista radiológico, como por lo que a sus otros parámetros físico-químicos y organolépticos se refiere, de acuerdo con lo establecido en el Real Decreto de *Criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano*¹.

El presente desarrollo es por tanto una primera respuesta al mencionado Real Decreto, ya que en él se proponen una serie de posibles actuaciones que deben ser rápida y fácilmente implementables en las estaciones de tratamiento de aguas potables, en el supuesto de que se detecte que el agua bruta utilizada contiene una concentración radiactiva superior a los niveles señalados por la autoridad sanitaria.

En resumen, tres son las propuestas de actuación descritas en el presente documento:

1. En el caso de aguas que contienen actividades significativas para el uranio y/o el radio, se propone un tratamiento de potabilización, calificable de

¹ Real Decreto 140/2003 sobre *Criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano*. Publicado en el BOE nº 45 de 21 de febrero de 2003.

estándar, en el que controlando las condiciones en las que éste se efectúa, se obtienen unas aguas, que además de ser química y organolépticamente potables, han reducido notablemente su contenido radiactivo natural, de forma que se produce una disminución media en la dosis debida a su ingesta del 90%.

2. En el caso de aguas que contienen actividades significativas para radionucleidos artificiales, se propone así mismo un tratamiento de potabilización, calificable de estándar, en el que controlando las condiciones en las que éste se efectúa, se obtienen unas aguas, que además de ser química y organolépticamente potables, pueden llegar a reducir notoriamente dichas actividades. Concretamente, se deduce, a partir del estudio efectuado para el americio, que los transuránicos son eliminados del agua en su práctica totalidad para un amplio rango de condiciones en las que llevar a cabo los tratamientos de potabilización. Por su parte, la eliminación conjunta de los productos de fisión presentes, centrando la atención al respecto en este estudio en el

cesio y el estroncio, requiere controlar las condiciones en las que se efectúa dicho tratamiento, siendo finalmente eliminables en el proceso de filtración y obteniendo soluciones calificables de excelentes con el uso de filtros bicapa.

3. Dado los buenos resultados obtenidos, tanto para radionucleidos de origen natural como artificial al aplicar los tratamientos aquí propuestos, se produce un desplazamiento de dichos contenidos radiactivos, desde las aguas a los fangos generados durante los citados tratamientos, de forma tal que éstos últimos pueden incorporar concentraciones radiactivas tales que no es posible gestionarlos de manera tradicional. Por este motivo, se han identificado las formas químicas en las que en cada caso se alojan los diferentes radionucleidos en los fangos producidos, posibilitando el deducir el método menos agresivo por el que éstos pueden ser extraídos, para su posterior concentración y adecuada gestión y en consecuencia, para poder aplicar a la fracción remanente de los fangos los usos tradicionales de gestión.

Sumario

Resumen	5
Introducción	9
Antecedentes	13
Objetivos	17
Escenario	21
Metodología	29
Resultados	49
Conclusiones	63

La disponibilidad de unos recursos hídricos con una calidad aceptable resulta imprescindible para garantizar la supervivencia de una colectividad y, a partir de dicha condición, toda mejora que se consiga en la calidad de los citados recursos permite paralelamente mejorar el nivel de calidad de vida de sus usuarios.

El estándar de calidad requerido puede no alcanzarse debido a un elevado número de motivos, siendo uno de ellos la presencia de sustancias radiactivas en las aguas de consumo. Para alcanzar dicho estándar se precisa diseñar e implementar un conjunto de actuaciones basadas en una consideración integral del ciclo del agua o ciclo hidrológico, en las que, entre otros muchos parámetros se vigile, por un lado, la presencia de la radiactividad y, por otro, se reduzca tal presencia cuando sea necesario, aplicando técnicas como las que se mostrarán a lo largo de este documento.

En este sentido el equipo de investigación, integrado por personal de las universidades de Extremadura (Departamento de Física Aplicada) y del País Vasco (Departamento de Ingeniería Nuclear y de Mecánica de Fluidos), ha venido trabajando durante los últimos años, desarrollando procedimientos de descontaminación radiactiva del agua compatibles con la tecnología actualmente en uso en nuestro país, para realizar la potabilización del agua que se suministra a los núcleos urbanos.

Concretamente, en un primer estudio realizado para abordar esta problemática, se desarrollaron, bajo los auspicios de la Empresa Nacional de Residuos Radiactivos (Enresa), el Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (Ciemat) y el Ministerio de Educación y Ciencia (MEC), una serie de modificaciones genéricas sobre los procedimientos habitualmente aplicados para la potabilización de las aguas, que permiten producir una muy elevada eliminación de sus contenidos radiactivos, para un espectro relativamente amplio de isótopos radiactivos, concretamente los del cesio, estroncio, americio, radio y uranio, satisfaciendo en todo caso los siguientes condicionamientos:

- a) Que las citadas modificaciones sean compatibles y por lo tanto, fácilmente incorporables a la infraestructura básica de potabilización actualmente existente en nuestro país.
- b) Que su implementación suponga un costo adicional asumible.
- c) Que se respete, en cualquier caso, las características físico-químicas finales del agua así tratada, de forma que ésta pueda seguir siendo considerada como química y organolépticamente potable.

Tras ello, se abordó el desarrollo de una serie de propuestas de modificaciones operativas para cada uno de los procedimientos de potabilización existentes en un amplio conjunto de tipos de recursos hídricos, con el fin de que pudieran abarcar toda la casuística existente en España, y que están afectados por significativas concentraciones de radionucleidos de origen natural, o que podrían verse potencialmente afectados por importantes evacuaciones de radionucleidos de origen artificial.

Así mismo, y ante el hecho de que como se verá más adelante, los procedimientos desarrollados logran de forma altamente eficiente el traslado de los contenidos radiactivos presentes en las aguas así tratadas a los fangos generados durante los citados procedimientos potabilizadores, se ha realizado la caracterización físico-química de los mismos y la localización de dichos productos radiactivos en los citados fangos, de forma que se puede, por un lado, determinar su significación radiológica y, por otro, diseñar las acciones necesarias que permitan su adecuada gestión.

Esta última fase de trabajo ha sido realizada con el soporte financiero de la Empresa Nacional de Residuos Radiactivos (Enresa) y del Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), y presentamos en esta publicación un resumen de los principales resultados obtenidos.

Sin embargo, queremos señalar que con las soluciones encontradas no se cubre la totalidad de la problemática.

ca existente relativa a la presencia radiactiva en las aguas de consumo, ya que no todos los abastecimientos disponen de una planta para el tratamiento del agua antes de su consumo. En particular, en muchas zonas de España con contenidos elevados de radionucleidos naturales en sus suelos, existen con frecuencia un significativo número de pequeñas poblaciones dispersas, en las que no existen plantas de tratamiento de las aguas para su potabilización y, en el mejor de los casos, las tratan con una simple cloración antes de su consumo.

Por ello, recientemente se ha abordado este problema, analizando cuál sería el medio más adecuado para realizar la descontaminación de las aguas en tales supuestos. Por otra parte, hasta la fecha tampoco se ha podido desarrollar la tecnología específica necesaria para la implementación de los procedimientos desarrollados en plantas reales de tratamiento del agua bruta, si bien es cierto que ambos retos se encuentran en estos momentos en fase de iniciar su desarrollo, con el mismo soporte financiero que el proyecto cuyos resultados se muestran en el presente documento.

ANTECEDENTES



De la observación de los esquemas del ciclo del agua, que se adjuntan como figuras 1 y 2, puede entenderse cómo el control radiológico de la parte natural de este ciclo debe realizarse mediante la determinación del contenido de radionucleidos en la atmósfera y en las masas de agua.

El control de este último compartimento ambiental se efectúa a través del seguimiento periódico de los niveles de actividad existentes en las aguas marinas y en las de los cauces fluviales, las cuales a su vez actúan como controladores de los posibles contenidos radiactivos en las correspondientes cuencas de escorrentía o en los tránsitos subterráneos. Una extensión natural de dichos controles son los diseñados para vigilar la calidad radiológica del agua destinada a usos domésticos y en definitiva al consumo humano.

Concretamente en nuestro país, el control de la calidad del agua de consumo humano corresponde a la

administración sanitaria y está regulada por el Real Decreto 140/2003. El Consejo de Seguridad Nuclear lleva a cabo la vigilancia radiológica de las aguas continentales y de las costeras en todo el territorio nacional, incluyendo el análisis de algunas muestras de agua potable, con la colaboración de los laboratorios de la Red de Estaciones de Muestreo (REM) y fundamentalmente del Centro de Estudios y Experimentación de Obras Públicas (Cedex) del Ministerio de Fomento.

Sobre esa parte del ciclo hidrológico se superponen las intervenciones humanas, las cuales suponen una utilización de los recursos hídricos disponibles en diferentes tipos de actividades, que deben venir seguidas del correspondiente tratamiento de las aguas empleadas, con el propósito de devolverlas a su estado de calidad inicial antes de su reincorporación al ciclo hidrológico para evitar una alteración del mismo. En este sentido, se ejerce un intenso control sobre los aportes radiactivos procedentes de las actividades industriales destinadas a

Figura 1. El ciclo del agua



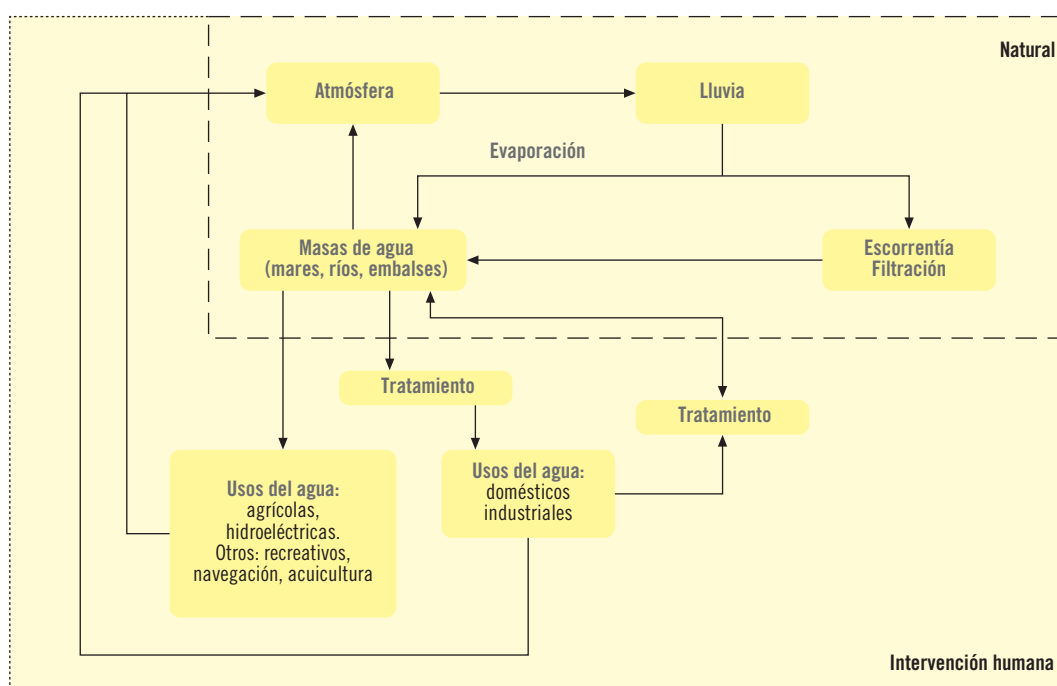
la generación nuclear de energía eléctrica y de las dedicadas al ciclo del combustible nuclear, englobándose plenamente en los citados controles los Planes de Vigilancia Radiológica Ambiental desarrollados entre otros, por los titulares de las citadas instalaciones, y que son supervisados por el Consejo de Seguridad Nuclear.

Igualmente, se viene realizando un control sobre otras actividades industriales, no necesariamente nucleares, que pueden implicar aportes de material radiactivo al ciclo hidrológico. En este sentido, pueden citarse las actividades vinculadas con las instalaciones radiactivas, entre las que se incluyen algunas actividades sanitarias y de investigación, así como aquellas que suponen el manejo de materiales que habitualmente no se consideran radiactivos, pero que contienen radionucleidos de origen natural. Dentro de este amplio apartado deben citarse los estudios que se vienen realizando sobre las características radiactivas de las aguas residuales urbanas, con especial intensidad en torno a las instalaciones hospitalarias, en donde se produce el

manejo de un amplio espectro de radionucleidos para diferentes técnicas de diagnóstico y terapia.

Sin embargo, se detecta la existencia de un relativo déficit al no disponer de la tecnología y la operativa necesaria para hacer frente de forma rápida y con soluciones económicamente abordables, al tratamiento de unos recursos hídricos destinados al consumo humano, en el caso de que éstos presenten unas concentraciones no aceptables de radionucleidos naturales o bien unos significativos niveles de contaminación por radionucleidos artificiales debido, en este último caso, al aporte de los mismos por su liberación accidental como consecuencia de alguna de las actividades antes enumeradas. Este mismo tipo de carencias también se pone en evidencia en la no existencia de tecnologías precisas para hacer frente a una contaminación de las aguas residuales, como consecuencia de algunas actividades humanas en el ámbito industrial o sanitario, de forma que permitan ser convenientemente tratadas antes de reincorporarlas al ciclo hidrológico.

Figura 2. Representación esquemática del ciclo del agua



El primero de los dos últimos aspectos antes enumerados puede ser particularmente importante en nuestro país. Las características climatológicas que son comunes a una gran parte del mismo, con la existencia de períodos prolongados de sequía, unidos a una creciente demanda de recursos hídricos, obligan con cierta frecuencia a un uso progresivo de las aguas subterráneas, las cuales, dependiendo de las características geológicas de los suelos de donde se extraigan, pueden poseer relativamente altas concentraciones de radionucleidos pertenecientes a las series radiactivas del uranio y del torio.

A partir de la experiencia previamente adquirida, a continuación se presentan los resultados obtenidos en el estudio realizado con el fin de evaluar los distintos escenarios y tipos de agua existentes en aquellas regiones en las que pueden presentarse algunas de las situaciones de interés antes enumeradas, valorando la capacidad que

los métodos de tratamiento habitualmente empleados tienen en la reducción del contenido de los radionucleidos presentes en dichas aguas y proponiendo, donde es posible, modificaciones destinadas a mejorar la eficiencia de su descontaminación radiactiva.

Así mismo, y ante la previsión, avalada por los resultados ya existentes, de que los procedimientos que se propongan logren de forma altamente eficiente el traslado de los citados contenidos radiactivos desde las aguas así tratadas a los fangos generados en los mencionados procedimientos potabilizadores, se propone realizar la caracterización fisicoquímica de los mismos y la localización de dichos productos radiactivos en los citados fangos, de forma que se pueda determinar, por un lado, su significación radiológica y, por otro, diseñar las acciones necesarias que permitan su adecuada gestión.

OBJETIVOS



3

El objetivo general del presente estudio es desarrollar una serie de modificaciones, fácilmente incorporables a los principales tipos de procedimientos de potabilización existentes, de forma que mejoren la capacidad que éstos ya poseen, en sus condiciones óptimas de trabajo, para producir la eliminación de los radionucleidos naturales existentes en dichos recursos hídricos o de los potencialmente incorporables, en el caso de los de origen artificial, hasta valores tan próximos al 100%, como sea técnicamente posible o al menos, que se reduzca su presencia hasta niveles tales que conviertan al agua así tratada en apta para el consumo humano, tanto desde el punto de vista radiológico², como manteniendo su estándar de calidad, por lo que a sus otros parámetros físico-químicos y organolépticos³ se refiere.

Para alcanzar el objetivo general, se han fijado los siguientes objetivos puntuales:

- Seleccionar un conjunto de seis a ocho poblaciones/recursos hídricos/sistemas de potabilización de las aguas, que posean unos contenidos radiactivos de origen natural fácilmente medibles. A tal fin sirve de guía para la localización de dichos objetos de estudio, los resultados que proporciona el proyecto Marna⁴.
- Seleccionar un conjunto de seis a ocho poblaciones/recursos hídricos/sistemas de potabiliza-

ción de las aguas, que encontrándose en cuencas fluviales con centrales nucleares de potencia, correspondan con núcleos de población lo suficientemente importantes y sistemas de potabilización lo suficientemente representativos, de forma que las soluciones que para ellos se aporten, puedan ser fácilmente extrapolables a otras poblaciones que también se vieran hipotéticamente afectadas por este tipo de contaminantes.

- Delimitar, a nivel de ensayos tipo test en laboratorio aquellos reactivos, de entre los ya probados sistemáticamente en un proyecto de investigación previo⁵ o de entre los calificables de complementarios a los primeros, así como sus condiciones de uso (concentraciones, valores del pH, fase del proceso potabilizador en donde aplicarlos), de forma tal que optimicen la descontaminación radiactiva de cada una de las aguas objeto del estudio, durante su particular proceso de potabilización.
- Ensayar, en una planta de tratamiento piloto a escala, cada uno de los procedimientos puestos a punto en la fase de ensayos a pequeña escala en el laboratorio de química, intentando maximizar para cada uno de ellos la descontaminación conseguible, garantizando en todo momento que el agua resultante cumple los requisitos de ser química y organolépticamente potable y que cada uno de dichos procedimientos suponen modificaciones rápidamente incorporables y a un costo razonable, por las plantas de tratamiento que de forma real o potencial debieran aplicarlos.
- Determinar la composición química, física y radiactiva de las diferentes materias sólidas resultantes, como consecuencia de los procesos de potabiliza-

² *Control radiológico del agua de bebida*. Guía de Seguridad n° 7.7. Consejo de Seguridad Nuclear. Madrid, 1990.

³ *Métodos oficiales de análisis fisicoquímicos para aguas potables de consumo público*. Boletín Oficial del Estado. Orden n° 15871. Madrid, 1987.

⁴ Suárez E., Fernández J.A., Baeza A., Moro M^a.C., García D., Moreno J., Lanaja J.M^a., *Proyecto Marna. Mapa de radiación gamma natural*. Colección de Informes Técnicos 5.2000. Consejo de Seguridad Nuclear. Madrid, 2000.

⁵ *Estudio de la adaptación de los procedimientos tipo de potabilización para aumentar la eficacia de la descontaminación radiactiva de los recursos hídricos*. Proyecto número 1FD97-0099. Proyecto cofinanciado entre el Plan Nacional de I+D y los Fondos FEDER. 1-11-1998 al 31-10-2001.

ción puestos a punto a nivel de planta piloto a escala, para los diferentes tipos de aguas y de radionucleidos considerados en el presente proyecto, en conjunción con sus respectivos tratamientos. En dicho momento, es de indudable interés efectuar la cuantificación del coeficiente de distribución, principalmente en el decantador de la concentración de fangos, con el objeto de poder evaluar la posible realimentación del proceso.

- Efectuar una especiación química exhaustiva de los radionucleidos presentes en los fangos, de forma que se conozca el porcentaje de los mismos susceptible de una mayor o menor capacidad de movilización y de ser en consecuencia más fácil o difícilmente extraíble de los lodos, a fin de diseñar finalmente, en el caso de que los análisis precedentes así lo aconsejen, el mejor procedimiento para efectuar dicha extracción, para su posterior concentración y aislamiento como residuo.

ESCENARIO



4

1. Selección de las aguas a estudiar

Con el objeto obtener resultados representativos de la realidad española, se consideró necesario emplear aguas procedentes de abastecimientos a diferentes poblaciones, intentando, en cualquier caso, que cubrieran razonablemente el espectro de las principales características y propiedades que poseen las aguas españolas. Para ello, se realizaron diferentes muestreos, tomando como referencia los resultados del proyecto Marna, a fin de delimitar las zonas que poseen un elevado contenido radiactivo natural, para, por un lado, evaluar el espectro de las características químicas de las aguas en ellas existentes –principalmente de origen subterráneo– y, por otro, evaluar su contenido radiactivo, seleccionando finalmente en base a estas dos características un pequeño conjunto representativo de las mismas.

Igualmente, se seleccionó un pequeño conjunto de abastecimientos que, encontrándose en cuencas fluviales con centrales nucleares de potencia, pudieran ser lo suficientemente representativos para que permitan extraer conclusiones extrapolables al resto de los abastecimientos de la cuenca.

2. Aguas con radionucleidos de origen natural

2.1. Programa de muestreo

En cumplimiento los objetivos marcados, se han seleccionado cuatro zonas geográficas en las que estudiar el presumiblemente elevado contenido radiactivo natural que debe existir en sus aguas. Así mismo, se han seleccionado tres cuencas fluviales en las que existe una probabilidad no nula de que, debido a una situación accidental, puedan sus aguas verse puntualmente afectadas por concentraciones radiactivas de origen artificial relativamente importantes.

Para la selección de las ubicaciones en donde pueden existir aguas de consumo público con elevados contenidos radiactivos naturales se ha utilizado el conocimiento previo existente, propio o de otras institucio-

nes, como el Consejo de Seguridad Nuclear, de los niveles radiactivos de los suelos existentes en los entornos de los acuíferos a muestrear. Así, se han considerado objeto de estudio las regiones uraníferas y graníticas de España y en concreto algunas pertenecientes a la comunidad autónoma de Extremadura, al conjunto castellano constituido por Toledo y Ávila, al conjunto gallego constituido por las provincias de Pontevedra y Orense, y a la provincia de Salamanca.

En estas zonas, se han seleccionado las siguientes poblaciones y/o zonas geográficas específicas. En la comunidad autónoma de Extremadura se localizaron dos abastecimientos, ambos en la provincia de Cáceres, que poseen un relativamente elevado índice de actividad alfa total y que, en consecuencia, son objetos adecuados para los fines del presente estudio. Estos son los de Torrequemada y Acehuche.

En el conjunto toledano-abulense, se ha explorado el norte de la provincia de Toledo, en donde se han muestreado aguas pertenecientes a los acuíferos existentes en la zona de Barcience y Borox, seleccionando finalmente el agua de la población citada en primer lugar, ya que además de poseer un mayor índice de actividad alfa total, tiene una mayor utilización real para el consumo humano. Por su parte, en el suroeste de la provincia de Ávila, y dado las características radiactivas que poseen las aguas allí muestreadas, se ha decidido utilizar en el presente estudio la perteneciente a uno de los acuíferos existentes en la zona de Manjabálago.

Las características químicas de estos acuíferos se recopilan resumidamente en las figuras 3 y 4.

Figura 3. Principales cationes presentes en las aguas seleccionadas en la zona: Extremadura - Ávila - Toledo

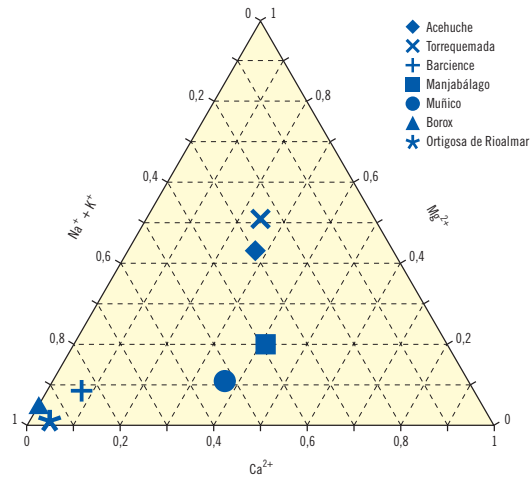


Figura 4. Principales aniones presentes en las aguas seleccionadas en la zona: Extremadura - Ávila - Toledo

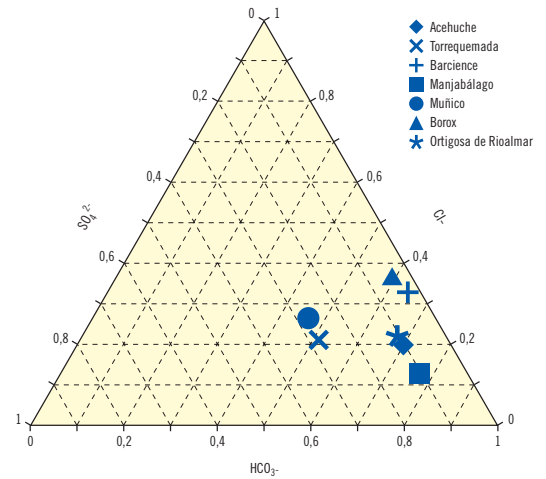


Figura 5. Principales cationes presentes en las aguas seleccionadas en la zona: Galicia

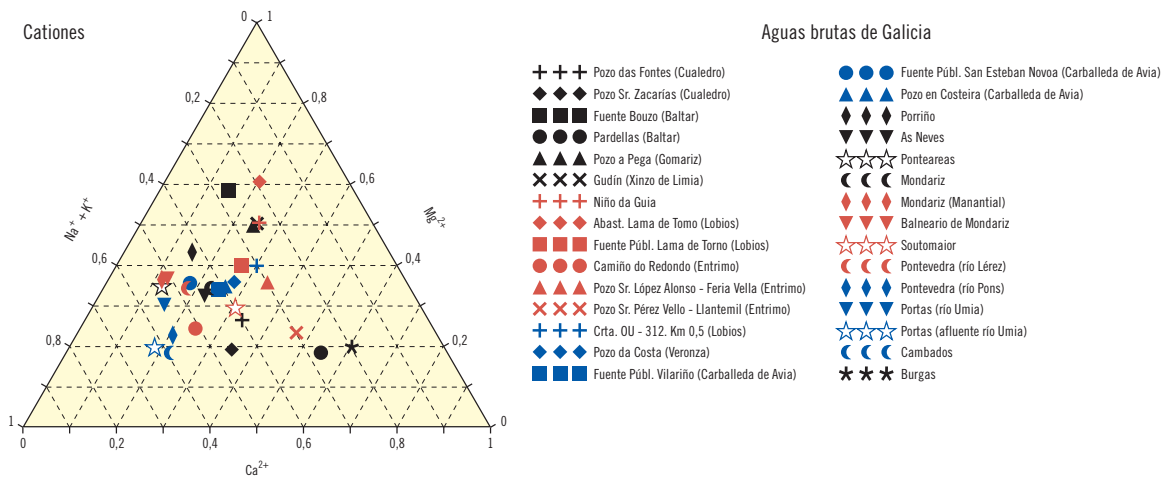


Figura 6. Principales cationes presentes en las aguas seleccionadas en la zona: Galicia

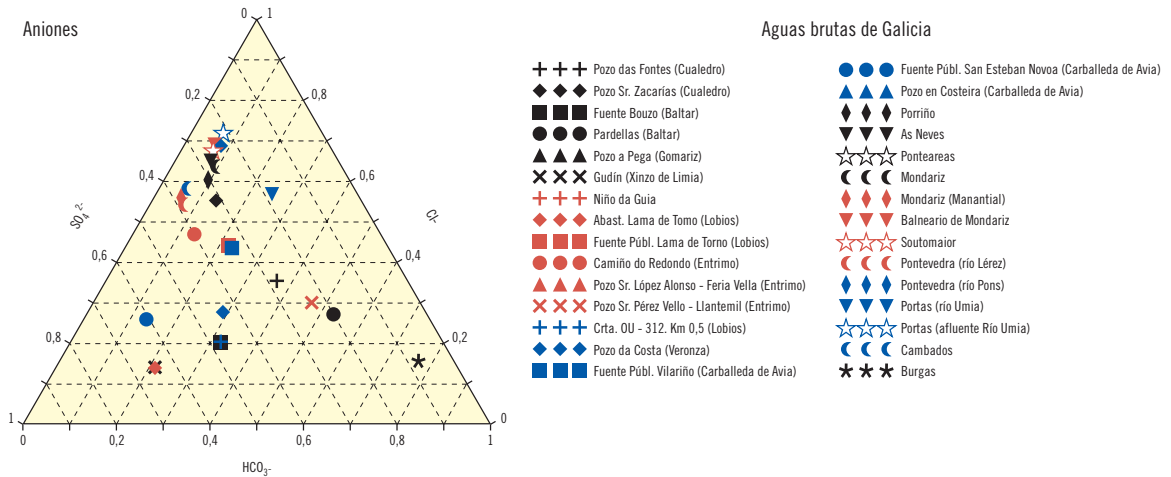


Figura 7. Principales cationes presentes en las aguas seleccionadas en la zona: Salamanca

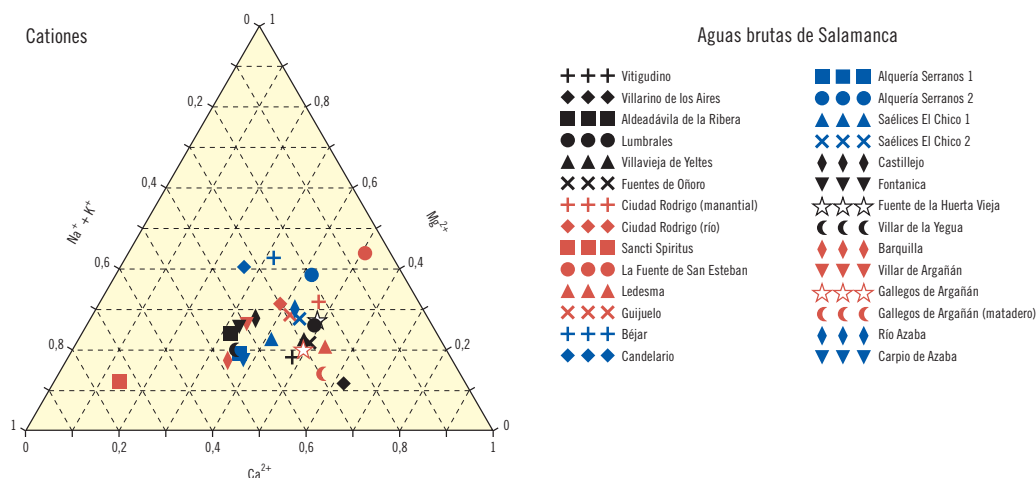
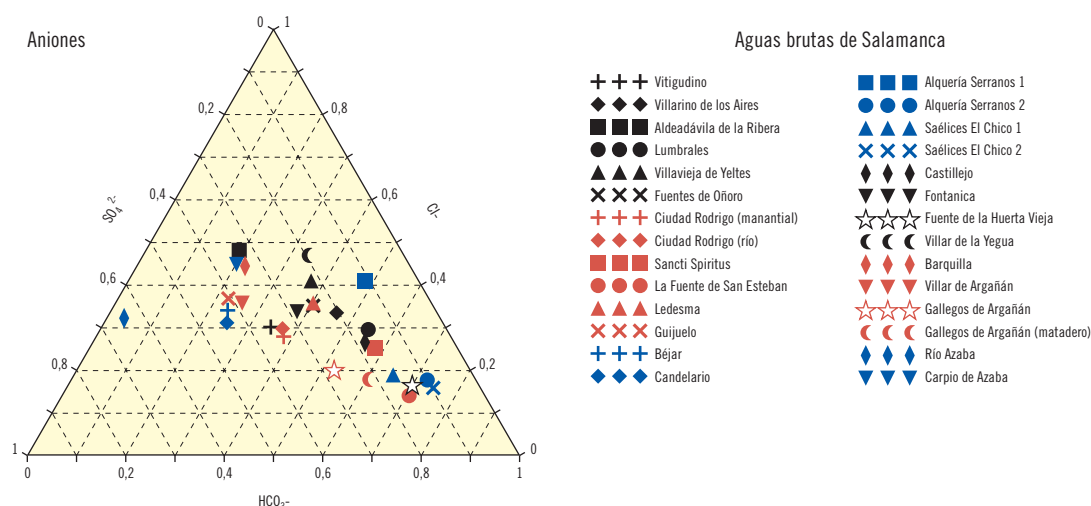


Figura 8. Principales aniones presentes en las aguas seleccionadas en la zona: Salamanca



En la región gallega se ha centrado el estudio en la zona sur de las provincias de Pontevedra y Orense. Para seleccionar los abastecimientos a estudiar se ha realizado un muestreo en las citadas provincias, utilizando como principal parámetro de selección el valor del índice de actividad alfa total que poseían dichas aguas. En las figuras 5 y 6 se han representado los diagramas de Piper correspondientes a las características químicas de las aguas muestreadas en esta región.

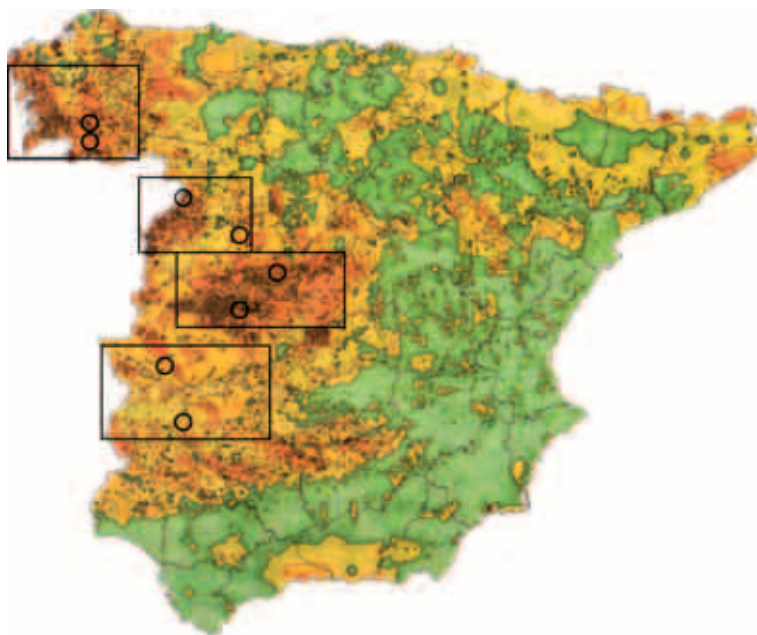
En la provincia de Salamanca se ha centrado el estudio en el eje Béjar-Lumbrales. Para seleccionar los

abastecimientos objeto de estudio se ha realizado un muestreo en esa región utilizando de nuevo como parámetro de selección el índice de actividad alfa total determinado para cada una de las aguas brutas recogidas en cada punto. En las figuras 7 y 8 se han representado, empleando diagramas de Piper, las características químicas de las aguas muestreadas.

2.2. Aguas seleccionadas para estudio

De entre el conjunto de aguas inicialmente estudiado, se ha seleccionado un subconjunto de tamaño

Mapa 1. Ubicación aproximada de los puntos de muestreo de aguas con elevados contenidos de radionucleidos naturales



acorde con la dimensión del proyecto, en el que se pretende exista una representación, tan amplia como sea posible, de los tipos de agua existentes en España y, en todo caso, para la parte del estudio dedicado a eliminar la presencia de radionucleidos de origen natural, con una actividad tan alta como así mismo sea posible.

Por ello, se han seleccionado para el presente estudio las aguas procedentes de Torrequemada, Acehuche, Barcience, Manjabálago, Cualedro, Lumbrales, Orense (Burgas) y Gallegos de Argañán, cuya localización aproximada es la que se muestra en el mapa 1, mientras que sus principales características químicas se muestran resumidamente en los diagramas de Piper de las figuras 9 y 10.

Figura 9. Principales cationes presentes en las aguas seleccionadas con significativos contenidos radiactivos naturales

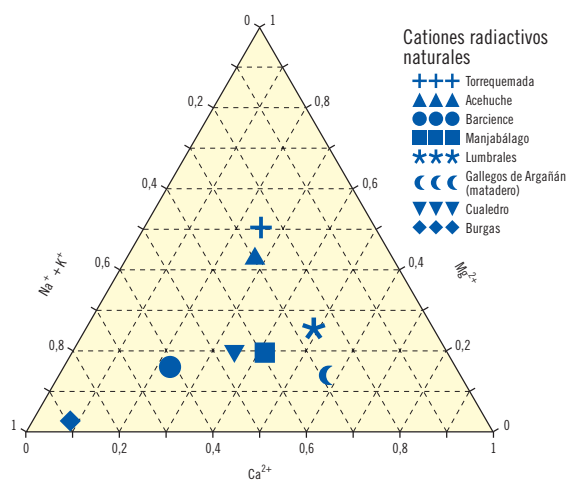
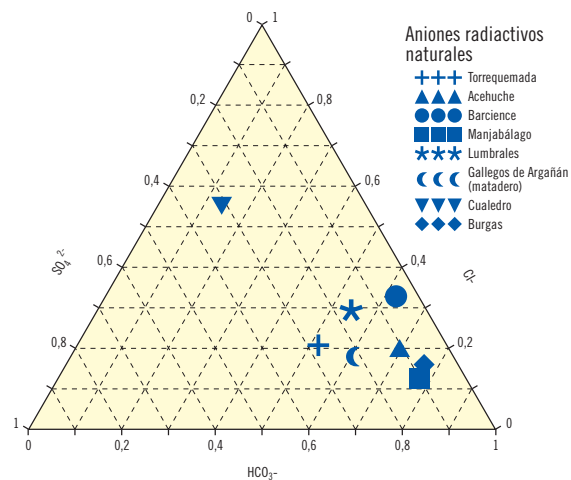


Figura 10. Principales aniones presentes en las aguas seleccionadas con significativos contenidos radiactivos naturales



3. Aguas con radionucleidos de origen artificial

Por otra parte, para el estudio de aguas potencialmente afectables con niveles importantes de radiactividad de origen artificial, se han seleccionado las tres cuencas fluviales en las que se encuentran las centrales nucleares españolas. Éstas son la del Ebro, la del Tajo y la del Júcar, si bien esta última esta hidráulicamente conectada con la anterior a través del trasvase Tajo-Segura y a su vez con el río Turia a través del trasvase Júcar-Turia, que abastece a la ciudad de Valencia. Para seleccionar las localizaciones objeto de estudio, se han utilizado los datos facilitados por las confederaciones hidrográficas del Ebro y del Tajo, así como por la Dirección General de Obras Hidráulicas y se han combinado en la medida de lo posible con las siguientes variables, con el fin de obtener la mayor diversidad posible:

1. Aguas con distintas características físico-químicas, lo cual se favorece, en principio, por pertenecer en muchos casos a cuencas fluviales distintas o bien al mismo río pero a tramos separados entre sí por distancias relativamente grandes.
2. Aguas que antes de ser consumidas son sometidas a diferentes procedimientos de potabilización.
3. Aguas que son consumidas por los núcleos de población más amplios posible, teniendo en cuenta los condicionantes antes citados.

Como consecuencia de la aplicación de dichos criterios de selección, se han elegido, de la cuenca del Tajo, las poblaciones de Tarancón y Almaraz, las cuales, al situarse en tramos relativamente distantes del mismo río, presentan diferentes características físico-químicas. En la cuenca del río Júcar, el agua que se suministra a la población de Valencia a través del trasvase Júcar-Turia, utilizando como referencia de tratamiento el seguido en la planta de Picassent. Por último, de la cuenca del río Segura se ha seleccionado como zona de influencia del canal del Taibilla la distribución de agua en el entorno de la población de Alicante.

En el río Ebro, los análisis físico-químicos ponen de manifiesto que, aguas abajo de la central nuclear Santa María de Garoña, sólo se tienen dos zonas diferenciadas: una en cabecera y otra cerca de la desembocadura. Por ello, y tras un viaje de inspección en el que se estudiaron varias posibilidades (San Vicente de la Sonsierra, Calahorra, etc.), se han seleccionado dos puntos de muestreo. El primero en Agoncillo, población situada en la comunidad autónoma de La Rioja y a 3 km de Logroño que cuenta con un extenso polígono industrial, en el que se ubican diversas industrias alimentarias de amplio impacto. El segundo en Campredó, provincia de Tarragona, a la altura de Xerta, junto a la captación de agua del río Ebro mediante dos canales de riego que abastecen a la planta de tratamiento situada en L'Ampolla, desde la que se suministra agua potable a la ciudad de Tarragona.

Las características químicas de estas aguas, de igual modo que con las anteriores, se han representado en los correspondientes diagramas de Piper, que se muestran seguidamente.

La ubicación aproximada de todos estos puntos puede verse en el mapa 2 que se incluye a continuación.

Figura 11. Principales cationes presentes en las aguas seleccionadas que podrían contener significativos contenidos radiactivos artificiales

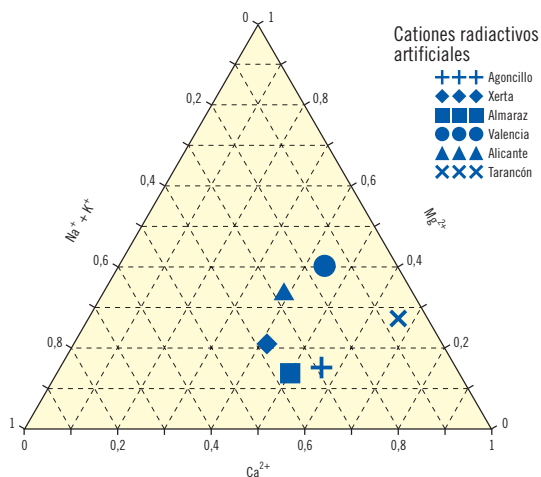
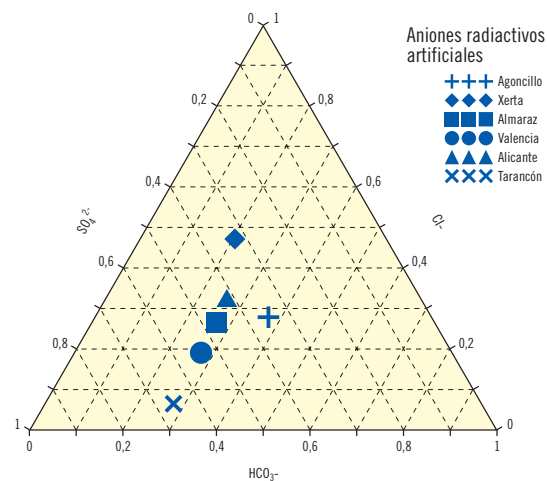


Figura 12. Principales aniones presentes en las aguas seleccionadas que podrían contener significativos contenidos radiactivos artificiales



Mapa 2. Ubicación aproximada de los puntos de muestreo de aguas con contenidos potenciales de radionucleidos artificiales





1. Experiencias de coagulación-floculación o de *jar-test*

Previo a la realización sistemática de las experiencias de coagulación-floculación o ensayos *jar-test*, se analizaron los procesos de potabilización que se aplican en las distintas poblaciones seleccionadas para el presente estudio. Entre las aguas que poseen un contenido en radionucleidos naturales superior al nivel medio de los existentes en nuestro país, destaca el agua subterránea de la población de Torrequemada, que se utiliza como refuerzo de su abastecimiento normal durante los periodos estivales o de sequía. Las demás aguas utilizadas en el presente estudio, corresponden a aguas procedentes de las poblaciones de Acehuche, Manjabálago, Barcience, Cualedro, Lumbrales, Orense y Gallegos de Argañán, todas ellas de origen subterráneo. Para todas ellas y, en el mejor de los casos, el único tratamiento que se aplica, antes de que sean utilizadas, es una simple desinfección con hipoclorito sódico.

Por otra parte, para las aguas potencialmente afectables con niveles significativos de radiactividad de origen artificial, se han reproducido a escala de laboratorio los procesos de potabilización que a continuación se detallan y que son los que se llevan a cabo en las estaciones de tratamiento de aguas potables (ETAPs) de Almaraz, Tarancón, Valencia, Alicante, L'Ampolla y Agoncillo.

La población de Almaraz para su abastecimiento utiliza un agua de tipo superficial, que es captada en el embalse de Valdecañas, existente en el río Tajo, a 15 km de la citada planta potabilizadora. Concretamente, el agua prepotable de Valdecañas es bombeada hasta un depósito, situado fuera de la planta de tratamiento, para posteriormente desde allí bombear de nuevo el agua hasta la planta. El primer tratamiento que se aplica es una precloración, en la misma conducción del agua que llega hasta el estanque en donde se produce la coagulación, la cual se lleva a cabo mediante la utilización de sulfato de aluminio y con agitación rápida. Después, el agua es conducida por gravedad hacia

unos decantadores, en los que se separa la fase sólida del agua ya tratada. Posteriormente, se filtra el agua mediante el uso de filtros de arena, para desinfectarla más tarde por cloración. Por último, el agua ya calificable de potable, es almacenada en un depósito para ser distribuida a la población.

El agua que abastece a la población de Tarancón, procede de una planta potabilizadora situada a 20 km de dicha localidad, y utiliza como agua prepotable la del embalse de Almoguera, situado en el río Tajo. Dicha planta distribuye además agua potable a toda la comarca de Tarancón. A esta agua bruta se le somete a un proceso de coagulación con un polímero de aluminio, concretamente el policlorosulfato básico de aluminio, DKFLOC 1010 y seguidamente se lleva a cabo el proceso de decantación de los flóculos formados, para con posterioridad, hacer pasar el agua por lechos filtrantes de arena. Por último, se le aplica un proceso de postcloración, antes de que el agua potable sea bombeada hacia Tarancón y a las poblaciones de su alrededor.

El agua potable que abastece a la población de Valencia, procede de la estación de tratamiento de Picassent. Para su potabilización se le somete inicialmente a una preoxidación mediante permanganato, cloro u ozono, cuando las condiciones fisicoquímicas del agua así lo requieren, que no suele ser lo habitual. A partir de ese momento, se desarrolla un proceso de coagulación con un polímero de aluminio, PAX XL-63 y seguidamente se realiza la floculación con un polímero orgánico, CROSEFLOC A-220. A continuación, se lleva a cabo el proceso de decantación de los flóculos formados, para hacer pasar después el agua por los lechos filtrantes de arena. Por último, se aplica un proceso de postcloración, antes de que el agua potable sea bombeada hacia los depósitos, en donde es almacenada para ser distribuida a la población.

El agua potable consumida en la ciudad de Alicante procede de la estación de tratamiento de Torrealta, a la que se bombea el agua prepotable desde el canal del

trasvase Tajo-Segura. El agua, una vez en dicha planta, es sometida a una precloración con cloro gas, para después realizar el proceso de coagulación-floculación, utilizando como coagulante el sulfato de aluminio y como floculante la sílice activada. Seguidamente se lleva a cabo el proceso de decantación de los flóculos formados, para, a continuación, hacer pasar el agua por unos lechos filtrantes de arena sílicea. Por último, se realiza un proceso de postcloración, para que el agua potable sea consumible por la población.

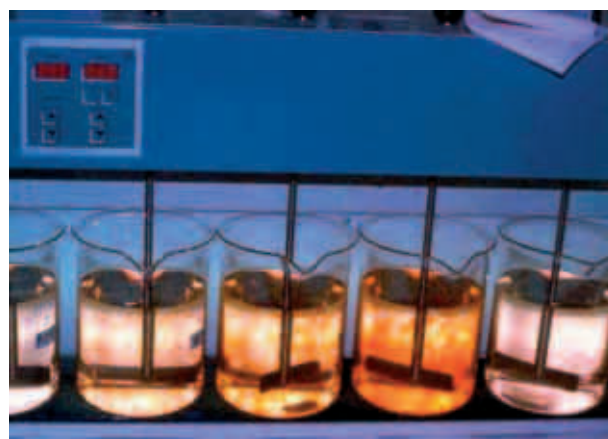
El agua bruta captada en la estación de Xerta, procede del río Ebro. Ésta, mediante los dos canales de riego que arrancan en el citado punto, suministra a la planta de tratamiento situada en L'Ampolla que abastece a la ciudad de Tarragona. Esta planta emplea un sistema de potabilización que usa cloruro férrico como coagulante, con una recirculación de fangos de decantación del 1% de concentración y tal que constituyen el 25% del volumen de alimentación a la planta.

El agua bruta que se potabiliza en la ETAP de Agoncillo procede del río Ebro y entra a dos depósitos de la planta a través de varios canales. Una vez allí sufre el primer tratamiento, consistente en una precloración, en este caso mediante la adición de cloro. Después, el agua se introduce en un decantador cilíndrico-cónico, donde se produce la coagulación. Ésta se lleva a cabo mediante la utilización de un policloruro básico de aluminio, sin aplicar ningún tipo de floculante. El agua asciende por el interior del decantador y desciende por el exterior del mismo, sedimentando el fango en su parte inferior. Este fango no es tratado ni analizado, sino que se vierte directamente al río Ebro. Posteriormente, se filtra el agua mediante el uso de un filtro de arena sílicea. Por último, el agua es desinfectada mediante cloración.

Para realizar en el laboratorio los procesos que emulen los que se llevan a cabo en las plantas potabilizadoras anteriormente reseñadas, se suelen utilizar una serie de ensayos denominados *jar-test* o de coagulación-floculación. Este tipo de ensayos vienen recogidos en la norma ASTM D2035-80 (reaprobada en 1995)

*Standard practice for coagulation-flocculation jar test of water*⁶ y su ejecución se muestra en la figura 13. Con ellos, se pretende encontrar las mejores condiciones de trabajo para el proceso de coagulación-floculación. Para ello, debe seleccionarse el tipo de coagulante a utilizar, que dada las prácticas comúnmente seguidas en las ETAPs objeto de este estudio, se ha seleccionado que sean compuestos en base hierro o en base aluminio. La misma motivación ha sido la que ha servido de guía en la selección del tipo de floculante, así como para determinar las dosis más adecuadas para los dos antes citados tipos de compuestos. También, deben encontrarse los mejores valores para diversos parámetros, tales como el pH, la turbiedad y la temperatura del agua, o para diferentes variables experimentales tipo, como la velocidad y el tiempo de agitación o el tamaño del flóculo, con el fin de maximizar la eliminación de los agentes indeseables que están presentes en el agua.

Figura 13. Ensayos de coagulación floculación realizados en el laboratorio según la norma ASTM D2035-80



⁶ ASTM, American Society for Testing and Materials. 1980. *A standard practice for coagulation-flocculation Jar test of water*. Designation D 2035-80. USA.

Dadas las características físico químicas que poseen todas las aguas estudiadas y los tamaños de las diferentes poblaciones que de ellas se abastecen, en algunos casos se emplea para su potabilización una simple postcloración, mientras que en otros casos se efectúa un proceso de potabilización calificable de completo, integrado por las etapas de pretratamiento-clarificación-desinfección. Para las poblaciones en las que se aplica una simple postcloración como proceso de potabilización, y dado que previsiblemente éste es un proceso altamente ineficaz para la eliminación de los radionucleidos naturales contenidos en dichas aguas, se ha ensayado e intentado optimizar un proceso de potabilización integrado por las etapas de clarificación y postcloración. Por otro lado, para las poblaciones que utilizan un procedimiento de potabilización calificable de completo, se ha emulado en el laboratorio dicho proceso y las condiciones de trabajo que utiliza la planta, con el fin de mejorar el grado de descontaminación radiactiva que se produce durante el mismo. Además, se han realizado otras experiencias en las que puntualmente se han incorporado otros reactivos complementarios a los utilizados en las ETAPs de manera rutinaria, con el fin de intentar maximizar la eficacia en la descontaminación radiactiva para los diferentes radionucleidos aquí considerados.

Al realizar todos estos ensayos en el laboratorio, se han seguido los siguientes pasos:

1.1. Pretratamiento

Este proceso se lleva a cabo agitando la muestra acuosa a una velocidad de 120 rpm durante cuatro minutos.

1.2. Clarificación

Coagulación

Se han buscado los valores de concentración óptimos de los coagulantes para el propósito perseguido, ya estén éstos fabricados en base hierro o en base aluminio. Para ello, se ha partido de los rangos normalmente empleados en los procesos de potabilización, es decir, de 20-250 mg/l, para los reactivos en base hierro

y de 20-150 mg/l, para reactivos en base aluminio⁷. También se ha determinado el valor más adecuado para el pH de coagulación utilizado en las ETAPs, dentro del rango 6-10, para las diferentes aguas analizadas. La ejecución de todos estos ensayos ha sido posible gracias a la experiencia adquirida durante el desarrollo del proyecto *Estudio de la adaptación de los procedimientos tipo de potabilización para aumentar la eficacia de la descontaminación radiactiva de los recursos hídricos*⁵, previo al que ahora se describe.

También hay que destacar que se han determinado, de la misma forma que para los coagulantes, los valores óptimos de todos los reactivos complementarios que se han ido utilizando en algunos de los diferentes ensayos.

Este proceso se realiza mediante agitación de la muestra acuosa durante 2 minutos, a 120 rpm, para conseguir una buena mezcla y una rápida estabilización en el cambio del valor del pH de la muestra acuosa.

Floculación

Al igual que para los coagulantes, la concentración más adecuada de los floculantes fue optimizada realizando diferentes ensayos para distintas concentraciones de los mismos.

Este proceso se efectúa mediante la agitación de la muestra acuosa durante 2 minutos, a 120 rpm, para a continuación, dejar crecer los flóculos durante otros 20 minutos, manteniendo la solución con una velocidad de agitación de 50 rpm.

⁷ Degremont, 1979. *Manual técnico del agua*. Rueil-Malmaison Cedex, France, Ed. Grafo S.A., Bilbao. España.

⁵ *Estudio de la adaptación de los procedimientos tipo de potabilización para aumentar la eficacia de la descontaminación radiactiva de los recursos hídricos*. Proyecto número 1FD97-0099. Proyecto cofinanciado entre el Plan Nacional de I+D y los fondos FEDER. 1-11-1998 al 31-10-2001.

Tabla 1. Condiciones de trabajo empleadas para la realización de los ensayos de coagulación-floculación en las aguas analizadas

Agua	pHs de trabajo	Coagulantes	Floculantes	Regulador de pH	Reactivos complementarios
Torrequemada	6 y 10	Sulfato férrico (110 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25 mg/l)	NaOH y HCl	Permanganato potásico (0,15 mg/l)
Acehuche	6, 7,5 y 10	Sulfato férrico (30 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25 mg/l)	NaOH y HCl	Permanganato potásico (0,20 mg/l)
Barcience	6, 7,5 y 9,5	Sulfato férrico (40 mg/l) Sulfato de aluminio (40 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25 mg/l)	NaOH y HCl	-
Manjabálago	6, 7,5 y 9,5	Sulfato férrico (40 mg/l) Sulfato de aluminio (60 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25 mg/l)	NaOH y HCl	-
Cualedro	6	Sulfato férrico (110 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25mg/l)	NaOH	-
Lumbrales	6	Sulfato férrico (110 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25mg/l)	-	-
Burgas	6	Sulfato férrico (110 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25mg/l)	HCl	-
Gallegos de Argañán	6	Sulfato férrico (110 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25mg/l)	HCl	-
Almaraz	6, 7,5 y 10	Sulfato férrico (40 mg/l) Sulfato de aluminio (40 mg/l)	Prosedim ASP 25 (0,25 mg/l)	NaOH y HCl	CaCO ₃ (100, 200 y 300 mg/l)
Tarancón	7,5 y 9,5	Sulfato de aluminio (20 mg/l) DKFLOC 1010 (15 mg/l)	Prosedim ASP 25 (0,3 mg/l)	NaOH	CaCO ₃ (100 mg/l) y CO ₃ ²⁻ -(400 mg/l)
Valencia	7,5 y 9,5	Sulfato de aluminio (70 mg/l) PAX XL-63 (90 mg/l)	CROSEFLOC (0,3 mg/l)	NaOH	CaCO ₃ (100 mg/l)
Alicante	7,5 y 9,5	Sulfato de aluminio (40 mg/l)	Prosedim ASP 25 (0,3 mg/l)	NaOH	CO ₃ ²⁻ -(40-400 mg/l)
Xerta	6,7-7,05	Cloruro férrico 40% (11 mg/l)	Prosedim ASP 25 (0,25 mg/l)	-	-
Agoncillo	7,4	Policloruro de aluminio 18% (40 mg/l)	-	-	-

Decantación

Los flóculos formados se dejan precipitar, sin agitación, mediante la ayuda de la gravedad. Este proceso tiene una duración de 30 minutos.

Filtración

Como resultado de la ejecución de esta etapa en la muestra acuosa, se obtienen dos fracciones bien diferenciadas. Por una parte, se recogen, mediante la retención con papel de filtro convencional, los flóculos más ligeros que no se han podido separar del agua en la etapa previa de decantación, y por

otra, se consigue un agua limpia, exenta de partículas coloidales.

1.3. Postcloración

El agua, una vez clarificada, se desinfecta de posibles agentes patógenos, para así cumplir la normativa en vigor de aguas potables⁸. El desinfectante utilizado en este proceso, ha sido el hipoclorito sódico, en una

⁸ Real Decreto 140/2003 sobre *Criterios sanitarios de la calidad de la agua de consumo humano*. Publicado en el BOE nº 45 de 21 de febrero de 2003.

concentración tal que la concentración de cloro residual en el agua fuera de 0,2 mg/l.

En la tabla 1 se muestran de forma resumida, las condiciones experimentales concretas empleadas para las diferentes aguas tratadas a lo largo del presente estudio, tras la realización de los convenientes ensayos previos, en los que se delimitaron los valores óptimos de los tipos y concentraciones de coagulantes y floculantes, así como de los pHs de trabajo.

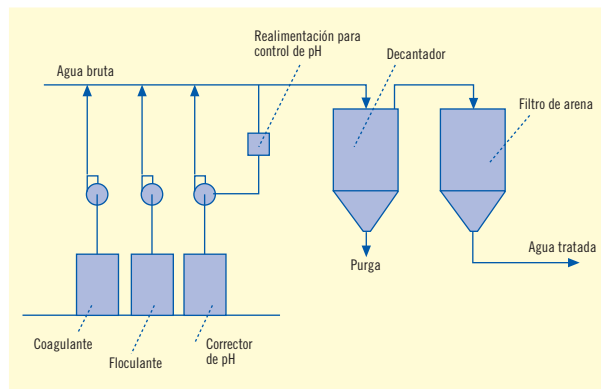
2. Experiencias en la planta piloto

2.1. Estructura

Con el objeto de verificar la reproducibilidad de los resultados obtenidos en el laboratorio, se ha diseñado una experiencia que permite ensayar la descontaminación de los radionucleidos naturales y artificiales en una planta piloto. Para ello, se ha diseñado una planta que consta de dos bidones de 200 litros cada uno, en donde se almacena el agua que alimenta al sistema. Éste consta de un dispositivo de altura manométrica constante, que permite mantener una presión constante en el sistema de alimentación, un decantador cilíndrico-cónico, donde se realizará el proceso de coagulación-floculación, y un filtro de arena que finaliza el proceso.

La dosificación, tanto de coagulante como de floculante, es efectuada mediante bombas dosificadoras de émbolo y la regulación del valor de pH es efectuada mediante un sistema automático provisto de un electrodo de medida y una bomba dosificadora, también de émbolo, como se muestra en la figura 14.

Figura 14. Esquema de dosificación y control de la planta piloto



El proceso de decantación tiene lugar en un decantador cilíndrico-cónico, cuyas características fueron calculadas utilizando el código Fluent de dinámica de fluidos computacional, para un caudal máximo de tratamiento de 35 l·h⁻¹, con una velocidad ascensional de máxima de 0,5 m·h⁻¹, si bien en el presente estudio se empleó un caudal de 15 l·h⁻¹, ya que se observó que de esta forma se optimizaba la separación de los flóculos.

La estructura interna del decantador es la que se muestra en la figura 15 y los campos de velocidad para caudales de 35 y 15 l·h⁻¹ pueden verse en las figuras 16a y 16b.

Figura 15. Estructura interna del decantador

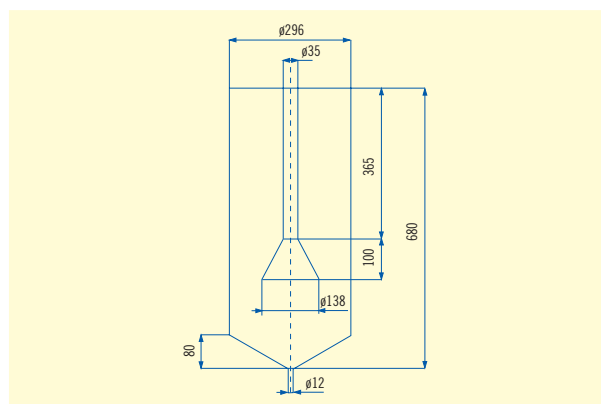


Figura 16a. Campos de velocidad (m/s) para un caudal de 35 l·h⁻¹

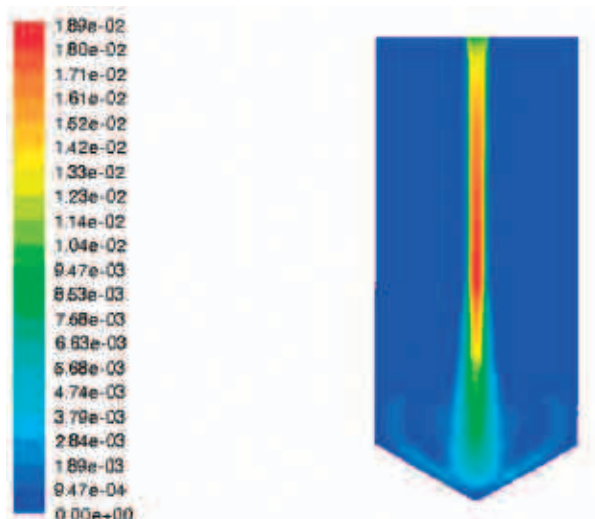
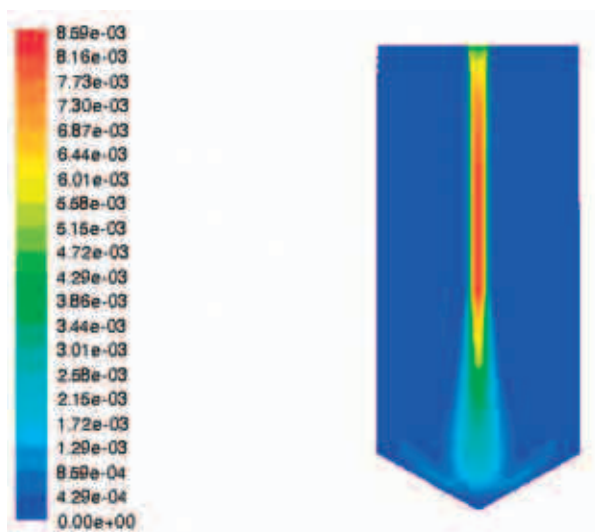


Figura 16b. Campos de velocidad (m/s) para un caudal de 15 l·h⁻¹



La filtración se realiza mediante un filtro de 50 cm de grosor de arena de 1,2 mm de tamaño efectivo.

La arena empleada proviene de un depósito sedimentario del período Holoceno de la era Cuaternaria que proceden de areniscas. Éstas están compuestas por cuarzo (18-50%), feldespatos (9-12%) que son silica-

tos con estructura tetraédrica tridimensional, y minerales accesorios (< 2%), lo que permite explicar el comportamiento de la arena empleada en el filtro, en base a retenciones por desequilibrio de las cargas superficiales y a la existencia de cationes intercambiables. Se determinó que la capacidad de cambio de esta arena es de 3,12 mEq/100 g.

La carga de arena del filtro fue renovada al término de cada una de las experiencias realizadas. Cada una de ellas estuvo centrada en una de las aguas seleccionadas, para un determinado tipo de contaminante: radionucleidos naturales o artificiales. Debe así mismo indicarse que durante cada experiencia se ensayaron, en general, dos valores del pH.

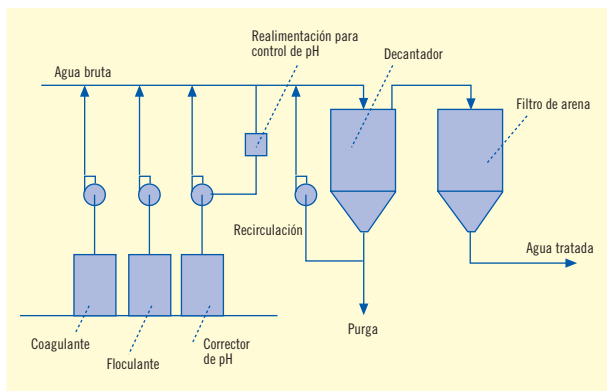
La estructura general de la planta se muestra en la figura 17.

Figura 17. Planta piloto



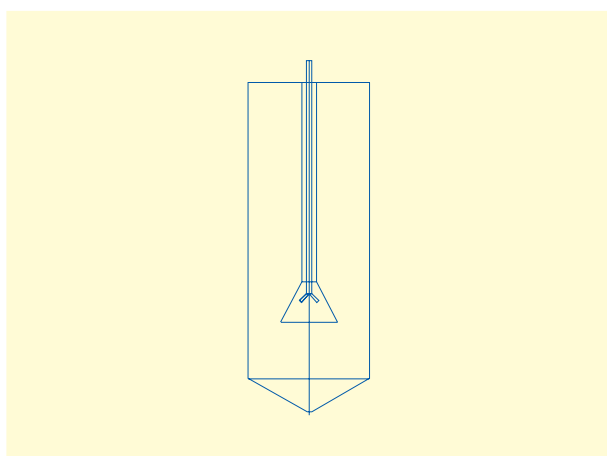
En alguna ocasión, y para simular prácticas concretas llevadas a cabo en algunas de las plantas de tratamiento seleccionadas, se ha habilitado un canal de recirculación de fangos, que permite emplear los fangos ya generados, tomándolos del fondo del decantador, con una concentración del 1%, para conseguir una entrada que contenga un 25% de recirculación. Para ello, se ha realizado la modificación en la planta que se indica en la figura 18.

Figura 18. Esquema de dosificación y control de la planta piloto con recirculación de fangos



Igualmente, en alguna ocasión ha sido necesario verificar la efectividad que tiene para retener radionucleidos una adición de arcillas o zeolitas molidas y con el fin de prolongar el tiempo de contacto del agua con el aditivo, se ha habilitado un sistema de agitación, en la zona del decantador en donde se forma el flóculo, el dispositivo que puede verse en la figura 19. Esta agitación fue realizada con un agitador de hélice moviéndose a una frecuencia lo suficientemente baja para no romper el flóculo y lo suficientemente elevada para mantener las partículas en suspensión durante un tiempo apreciable. La frecuencia de agitación seleccionada fue de ~50 rpm.

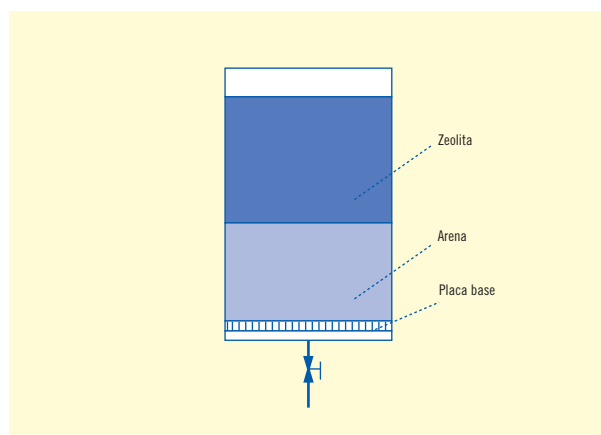
Figura 19. Decantador con agitación en la zona de coagulación



El sistema de filtración habitualmente empleado ha sido en algunas ocasiones reemplazado por un filtro bicapa de arena y zeolita, destinado a estudiar la retención selectiva de determinados radionucleidos, particularmente el radio, toda vez que su eliminación simultánea con el uranio no es posible en el sistema de decantación como se justifica más adelante.

Este filtro se construyó con una tubería de PVC de 125 mm de diámetro externo y 120 mm de diámetro interno, con una altura de 400 mm, y cuenta con una placa base de PVC, de un diámetro de 120 mm, con un orificio central de 10 mm. El filtro tiene el aspecto que se muestra en la figura 20 y ha sido diseñado para tener tiempos de permanencia de unos 20 minutos.

Figura 20. Disposición del filtro bicapa empleado



2.2. Operación

La planta piloto ha funcionado partiendo, unas veces, de un circuito lleno con agua potable en el que en un momento determinado se ha cambiado la alimentación al agua que se desea ensayar. Tras ello, durante las primeras tres horas y media de funcionamiento –que es el tiempo necesario para efectuar casi dos renovaciones completas del volumen del decantador– no se ha recolectado ninguna muestra, dado que se está renovando el agua en el citado decantador.

El agua se muestrea durante las tres horas siguientes de funcionamiento, a razón de una muestra cada 15 minutos, es decir, 12 muestras en total. En este sentido, se recogieron muestras tanto a la salida del filtro de arena como a la salida del decantador, es decir, previo al paso del agua por el proceso de filtrado.

Cuando ha sido necesario estudiar un segundo valor del pH de coagulación en el transcurso de la misma experiencia, se ha cambiado éste y se ha procedido a dar los mismos pasos que en la fase anterior: tres horas y media de funcionamiento para renovar el agua del decantador y posterior recogida de muestras cada 15 minutos, durante las tres horas siguientes.

Otras veces se ha partido del decantador vacío y se han recogido muestras una vez que éste ha comenzado a producir los primeros volúmenes de agua limpia. A partir de entonces todo ha transcurrido como se ha indicado para el caso anterior.

En ambas situaciones se ha mantenido una vigorosa agitación del tanque de agua de alimentación, destinada a evitar que se produzca la decantación de los sólidos que el agua a ensayar, o bruta, pudiera llevar en suspensión.

Por último, también se ha recogido una muestra de agua bruta antes y tras acabar todo el experimento, con objeto de tener, por medio de los correspondientes análisis, la absoluta seguridad de que no se ha producido ningún tipo de pérdida de radionucleidos por adsorción o decantación.

2.3. Condiciones operativas en los diferentes casos estudiados

Agoncillo

El análisis de los resultados de descontaminación obtenidos había puesto de manifiesto que, antes del filtro de arena, la descontaminación media adopta los siguientes valores:

Base coagulante		
Radionucleido	Fe	Al
Sr	32%	12%
Cs	23%	8%

Estos resultados motivaron el desarrollo de una experiencia destinada a verificar si efectivamente los coagulantes con base hierro son más eficientes en la descontaminación que los coagulantes con base aluminio.

Para ello, el ensayo realizado con agua de Agoncillo, en el que se empleó policloruro básico de aluminio como coagulante, fue repetido reemplazando este coagulante por sulfato férrico en forma comercial, $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$.

Ambos ensayos fueron además realizados por duplicado. En el primero de ellos se utilizó el coagulante y floculante sin aditivos, mientras que en el segundo se adicionaron 10 g de zeolita Linde AW500, que es una chabazita sintética, molida y tamizada por un tamiz 200 mesh ASTM.

En los ensayos con zeolita se observó una pérdida de la fracción más fina de la misma, por arrastre en la corriente de agua y también una pérdida por decantación.

Para evitar en la medida de lo posible estas pérdidas, en el ensayo con coagulante en base hierro, se habilitó una agitación en la zona de formación del coágulo en el decantador, que ha sido mostrada en la figura 19, de forma que permitiese incrementar el tiempo que la zeolita permanece en suspensión, así como el tiempo de contacto agua-zeolita.

Ensayo con aluminio

Se llevaron a cabo dos ensayos diferentes. El proceso seguido es idéntico en ambos, tanto a nivel de reactivos como de trazadores y de características del agua. Pero en uno de ellos, en el segundo, se adiciona una zeolita específica.

Las condiciones de trabajo empleadas reflejan lo más fielmente posible el procedimiento real de potabilización de la estación de tratamiento de agua potable de Agoncillo, por ello se empleó una concentración de $40 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de policloruro básico de aluminio al 18% de Al_2O_3 como coagulante, sin adición de floculante ni corrección de pH.

Tras este ensayo y con el objeto de valorar la efectividad que la adición de una zeolita podría tener en la eliminación de los radionucleidos, se realizó un segundo ensayo empleando el mismo procedimiento que en el ensayo anterior pero añadiendo la zeolita.

Ensayo con hierro

También en este caso se han llevado a cabo dos ensayos. El proceso seguido fue idéntico en ambos, tanto a nivel de reactivos como de trazadores. Pero en el segundo se adicionó la zeolita.

Las condiciones de trabajo empleadas fueron: $110 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, $0,25 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de Prosedim ASP25, que es un copolímero de acrilamida de ionidad débilmente aniónica, y NaOH, como regulador de pH.

El coagulante que se ha utilizado es sulfato férrico, cuyo pH óptimo para la coagulación-floculación debe ser superior a 5.

El pH de coagulación en el desarrollo de ambos experimentos fue de 8,5, que es superior al mínimo requerido. Estos valores de pH fueron medidos al tomar cada muestra.

En el segundo de los ensayos, se llevó a cabo el mismo procedimiento que en el anterior, pero habiendo realizado una adición de la misma zeolita que en el ensayo anterior, en la parte central del decantador.

Valencia

Para la operación de la planta piloto con el agua de esta procedencia, se empleó policloruro de aluminio

como coagulante, concretamente el PAX XL-63, en una concentración de $90 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ y como floculante se utilizaron $0,3 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de Crosefloc A-220, que es un polielectrolito aniónico.

Los valores de pH de coagulación empleados fueron 7,5 y 9,5. Estas condiciones son el resultado de adaptar las encontradas como más adecuadas para la descontaminación en los ensayos realizados en el laboratorio, llevados a cabo de manera previa a las experiencias en la citada planta piloto.

Xerta

Los dos ensayos realizados con esta agua siguieron procesos idénticos, tanto a nivel de reactivos como de trazadores. Sin embargo, en uno de ellos, se adicionó una zeolita específica, Linde AW500, que es una chabazita sintética.

En la operación de la planta piloto se empleó como coagulante $11 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de cloruro férrico al 40% y como floculante $0,15 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ del polielectrolito Prosedim ASP 25. El coagulante utilizado requiere para producir la coagulación-floculación un valor del pH superior a 5.

El pH de coagulación en el desarrollo de ambos experimentos en la planta piloto fue de 8,5, que es superior al mínimo requerido para que se produzca la coagulación. Los valores de pH han sido medidos al tomar cada muestra.

La planta de tratamiento de Xerta emplea en su operación una recirculación de fangos que ha sido simulada en la planta piloto empleada.

Para ello, se utilizó un montaje que extrae parte del fango existente en el fondo del decantador y lo impulsa e introduce en la parte superior del mismo con un caudal de $5 \text{ l}\cdot\text{h}^{-1}$, de modo tal que en el fondo del decantador se mantiene una concentración de fango del 1% en volumen. Por ello, antes de poner en funcionamiento la planta se preparó una disolución de 4 l de fango, es decir $\text{Fe}(\text{OH})_3$, con una concentración del 2% en volumen y se añadió al fondo

del decantador, tras lo cual se arrancó la recirculación. De esta forma, se mantiene durante todo el proceso la concentración de fango requerida.

Lumbrales

Esta agua proviene de un abastecimiento pequeño que no cuenta con planta potabilizadora. Por ello se empleó un coagulante, que ha mostrado su capacidad en ensayos previos para la descontaminación radiactiva, estableciendo la concentración a emplear mediante ensayos *jar-test*.

El ensayo en planta piloto se realizó empleando $110 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ como coagulante y $0,25 \text{ mg/l}$ de Prosedim ASP 25 como floculante.

El coagulante utilizado tiene un límite inferior para el pH en el proceso de coagulación-floculación de 5.

El pH de coagulación en el desarrollo del experimento fue de 6, sin necesidad de añadir un regulador de pH, valor que es superior al mínimo requerido para la precipitación del hidróxido de hierro y adecuado para maximizar eliminación de uranio ($\text{pH}=6$). Los valores del pH han sido medidos al tomar cada muestra.

Puesto que se quería introducir una zeolita específica para la retención de radio (A3) en el filtro de arena, se empleó el filtro mostrado en la figura 20. Así, se utilizaron dos filtros: el primero con una altura de 35 cm de arena previamente lavada con agua destilada y el segundo con la mitad inferior ocupada por una altura de 20 cm de arena y la superior con una altura de 18 cm de la citada zeolita específica para la retención del radio, que había sido acondicionada el día anterior con agua destilada.

La toma de muestras a la salida del filtro de arena en esta experiencia se dividió en dos fases, durante la primera mitad se tomaron muestras a la salida del filtro que contenía únicamente arena, mientras que durante la segunda mitad se recolectaron muestras a la salida del filtro que contenían arena y zeolita.

Gallegos de Argañán

Esta agua proviene de una fuente pública y no cuenta por tanto con planta potabilizadora. Por ello se empleó un coagulante, que ya ha mostrado su capacidad para la descontaminación radiactiva, en una concentración determinada mediante ensayos *jar-test*.

El ensayo en planta piloto se realizó empleando $110 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ como coagulante y $0,25 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de Prosedim ASP 25 como floculante.

El coagulante utilizado tiene un límite inferior para el pH en el proceso de coagulación-floculación de 5.

El pH de coagulación en el desarrollo del experimento fue de 6, siendo necesaria la adición de HNO_3 $0,06\text{M}$ para alcanzar este valor, que es superior al mínimo requerido para la precipitación del hidróxido de hierro y adecuado para obtener la máxima eliminación de uranio ($\text{pH}=6$). Los valores de pH han sido medidos al tomar cada muestra.

Puesto que se quería introducir una zeolita específica para la retención de radio (A3) en el filtro de arena, se empleó el filtro mostrado en la figura 20. Así, se utilizaron dos filtros: el primero con una altura de 35 cm de arena previamente lavada con agua destilada y el segundo con la mitad inferior ocupada por una altura de 20 cm de arena y la superior con una altura de 18 cm de la citada zeolita específica para la retención del radio, que había sido acondicionada el día anterior con agua destilada.

De nuevo, la toma de muestras a la salida del filtro de arena se dividió en dos fases, durante la primera mitad se tomaron muestras a la salida del filtro que contenía únicamente arena, mientras que durante la segunda mitad se recolectaron muestras a la salida del filtro que contenían arena y zeolita.

Almaraz

El ensayo fue realizado adaptando a la planta piloto las condiciones encontradas como más adecuadas para

la descontaminación en los ensayos previos realizados en el laboratorio. Así, se emplearon $70 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de sulfato de aluminio como coagulante y $0,26 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de Prosedim ASP 25 como floculante, con un pH de 7,2, que es el habitualmente empleado por la planta, y con otro a 9,5.

Torrequemada

El agua de Torrequemada es de origen subterráneo y no es sometida a tratamiento en planta antes de su consumo.

En el ensayo en la planta piloto a que fue sometida en el transcurso del desarrollo experimental se emplearon $114 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de sulfato férrico como coagulante y $0,26 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de Prosedim ASP25 como floculante, con dos diferentes pH de operación a 6 y 10.

Acehuche

El agua de Acehuche es de origen subterráneo y no es sometida a tratamiento en planta antes de su consumo.

En el ensayo en planta piloto al que fue sometida en el transcurso del presente desarrollo experimental, se emplearon $114 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de sulfato férrico como coagulante y $0,26 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de Prosedim ASP25 como floculante, con dos pH de operación a 6 y 10.

Manjabálago

Esta población tiene la posibilidad de abastecerse con aguas procedentes de dos orígenes diferentes: de un manantial (subterráneas) y de un embalse cercano a la población y en ninguno de los dos casos es sometida a tratamiento en planta para su potabilización. El agua empleada para la realización del ensayo en la planta piloto proviene del embalse.

En el transcurso del tratamiento en la planta piloto se emplearon $114 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de sulfato férrico como coagulante y $0,26 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de Prosedim ASP25 como floculante, con dos pH de operación a 6 y 9,5.

Tarancón

El ensayo del agua que abastece entre otras a la población de Tarancón se realizó empleando el policloro sulfato básico de aluminio DKFLOC 1010 como coagulante, con una concentración de $15 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$, y no se empleó ningún tipo de floculante. Los valores del pH ensayados fueron de 7,5 y 9,5.

Alicante

Para el agua de Alicante, se utilizó como coagulante sulfato de aluminio con una concentración de $40 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$, y como floculante el Prosedim ASP25, con una concentración de $0,33 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$.

Los valores de pH de coagulación empleados fueron de 9,5 y 10, y como regulador de pH se utilizó Na_2CO_3 .

El ensayo ha sido realizado en estas condiciones, al objeto de verificar la mejora que se produce en la descontaminación radiactiva del trazador de estroncio (^{85}Sr), observada en las experiencias previas llevadas a cabo en el laboratorio de química.

Cualedro

Esta agua proviene de un pozo de abastecimiento privado y no cuenta por tanto con planta potabilizadora. Por ello se empleó un coagulante, que ha mostrado en diversas experiencias previas su capacidad para la descontaminación radiactiva en una concentración determinada mediante ensayos *jar-test*.

En el ensayo en planta piloto al que fue sometida en el transcurso del presente desarrollo experimental se emplearon $110 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de sulfato férrico como coagulante y $0,25 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de Prosedim ASP25 como floculante, con un pH de operación de 6, obtenido empleando NaOH 0,04 M como regulador.

Puesto que se quería introducir una zeolita específica para la retención de radio (A3) en el filtro de arena, se empleó el filtro mostrado en la figura 20. Así, se

utilizaron dos filtros: el primero con una altura de 35 cm de arena previamente lavada con agua destilada y el segundo con la mitad inferior ocupada por una altura de 20 cm de arena y la superior con una altura de 18 cm de zeolita, específica para la retención del radio, que había sido acondicionada el día anterior con agua destilada.

En este caso, la toma de muestras a la salida del filtro de arena se dividió en dos fases, durante la primera mitad se tomaron muestras a la salida del filtro que contenía únicamente arena, mientras que durante la segunda mitad se recolectaron muestras a la salida del filtro que contenían arena y zeolita preparado previamente.

Burgas

Esta agua proviene de una fuente pública y no cuenta por tanto con planta potabilizadora. Por ello se empleó un coagulante, que ha mostrado su capacidad en diversas experiencias previas para la descontaminación radiactiva en una concentración determinada mediante ensayos *jar-test*.

En el ensayo en planta piloto al que fue sometida en el transcurso del presente desarrollo experimental se emplearon $110 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de sulfato férrico como coagulante y $0,25 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ de Prosedim ASP25 como floculante con un pH de operación de 6 obtenido empleando HNO_3 0,06 M como regulador.

Puesto que se quería introducir una zeolita específica para la retención de radio (A3) en el filtro de arena, se empleó el filtro mostrado en la figura 20. Así, se utilizaron dos filtros: el primero con una altura de 35 cm de arena previamente lavada con agua destilada y el segundo con la mitad inferior ocupada por una altura de 20 cm de arena y la superior con una altura de 18 cm de zeolita específica para la retención del radio, que había sido acondicionada el día anterior con agua destilada.

La toma de muestras a la salida del filtro de arena se realizó de forma diferente en la primera y en la segunda mitad de la experiencia, durante la primera mitad

se tomaron muestras a la salida del filtro que contenía únicamente arena, mientras que durante la segunda mitad se recolectaron muestras a la salida del filtro que contenían arena y zeolita.

3. Fangos, arenas y arcillas

3.1. Retención de radionucleidos en los fangos

Uno de los problemas existentes en los estudios de descontaminación radiactiva de las aguas, es la transferencia de los radionucleidos existentes en disolución al medio en el que se han retenido los contaminantes. En este sentido, las formas en las que se encuentren dichos radionucleidos retenidos, condicionarán la peligrosidad del residuo producido. En consecuencia, es necesario saber la forma química en la que se encuentran los mismos.

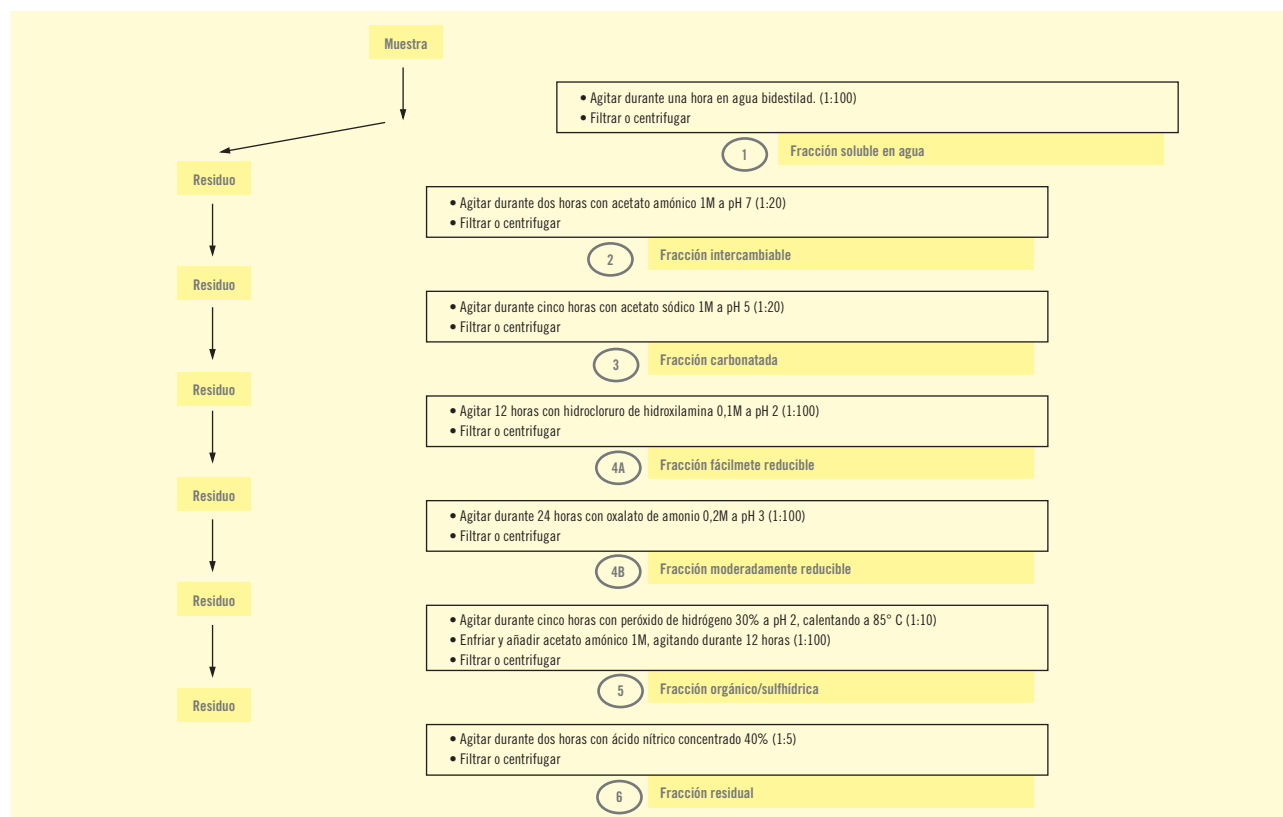
En las experiencias efectuadas en este estudio, el lodo obtenido en la planta potabilizadora a la escala utilizada durante los ensayos de potabilización de las aguas corresponde al tratamiento en la misma de un volumen de cada agua ensayada de aproximadamente 100 litros. Dicho lodo es finalmente retenido mediante un papel de filtro, de los comúnmente utilizados en el laboratorio, y posteriormente secado a 50°C . En la figura 21 se muestra la apariencia visual de alguno de los resultados obtenidos.

Figura 21. Fangos generados de la planta potabilizadora a escala, tras el correspondiente ensayo de potabilización de una misma agua bajo distintas condiciones de pH



Para realizar la especiación química de los fangos producidos, se ha desarrollado un método basado en el

Figura 22. Procedimiento experimental utilizado para la especiación química de los fangos



propuesto por Tessier y colaboradores⁹ y posteriormente modificado por Salomons y Förstner¹⁰. En la figura 22 se muestra un esquema del procedimiento de especiación química que se ha aplicado a los citados fangos.

Para realizar la especiación química, se han utilizado unos 0,5 gramos del lodo seco producido por cada

agua ensayada en la planta piloto. Inicialmente, se obtiene la denominada fracción soluble, (1) en la figura 22, mediante su disolución parcial con agua bidestilada. A continuación, el sólido resultante es tratado con acetato amónico, que se encuentra a pH neutro, obteniéndose así la fracción identificada como intercambiabile (2). La siguiente fracción se extrae mediante la adición de acetato sódico, a pH ligeramente ácido, resultando así la fracción calificable como carbonatada (3). Posteriormente se extrae la fracción reducible, que a su vez se divide en dos: la fracción fácilmente reducible (4A) –extraída del lodo mediante la utilización de hidroxilamina– y la fracción moderadamente reducible (4B) –utilizando en este caso oxalato amónico–. El siguiente paso, en la especiación química, es aquel por el que se obtiene la fracción orgánico/sulfhídrica (5), mediante la utilización de peróxido de hidrógeno y acetato amónico a pHs ácidos.

⁹ Tessier, A.; Campbell, P.G.C.; Visón, M., 1979. "Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals". *Anal. Chem.*, 57 (7): 844-851.

¹⁰ Salomons, W., Förstner, U., 1980. "Trace metals analysis on polluted sediments. Part 2, Evaluation of Environmental Impact. *Environ. Technology Letters* 1, 506-517.

Por último, la fracción residual (6) se obtiene mediante el uso de ácido nítrico concentrado.

Una vez separadas las distintas fracciones que integran el fango, se somete a cada una de ellas al correspondiente proceso de análisis radioquímico. Previamente a ello, las diferentes fracciones son desecadas y encapsuladas en cápsulas tipo petri. Así, para los fangos obtenidos en el tratamiento del agua de Tarancón –cuyo objetivo es el análisis de los niveles de actividad para radionucleidos artificiales emisores gamma que han sido incorporados a esta agua– su análisis se lleva a cabo mediante espectrometría gamma. Por otra parte, las fracciones obtenidas en la especiación de los fangos generados durante el ensayo de potabilización con la planta piloto a escala del agua de Torrequemada –que contiene una significativa concentración de radionucleidos naturales– se someten a un proceso de separación radioquímica del uranio y radio, y finalmente se cuantifican las actividades de dichos radionucleidos por espectrometría alfa.

3.2. Retención de radionucleidos por el filtro de arena

Para cuantificar la ubicación de los radionucleidos se efectuó un ensayo de retención por zeolita y posteriormente se procedió a efectuar un lavado de la misma con ácido nítrico, con objeto de evaluar si los radionucleidos retenidos serían eluidos por el citado lavado, observando que se producía una pérdida en el entorno del 5% y concluyéndose por tanto que no se produce prácticamente tal elución.

Por su parte, mediante el lavado de los filtros empleados para retener la materia en suspensión existente en el agua en forma de microcoágulos y fragmentos de zeolita, se efectuó la determinación de la actividad transportada por la mencionada materia en suspensión, concluyendo que la práctica totalidad, prácticamente el 99% de la citada actividad, se encuentra asociada a los microcoágulos. Así mismo, se observó la presencia de polvo de zeolita en el filtro. Por ello, cabe concluir que, por un lado, existen

partículas de zeolita que escapan del decantador y, por otro lado, que estas partículas prácticamente no contienen Cs ni Sr.

Para finalizar, ha de destacarse los resultados obtenidos en la determinación del contenido en arcillas presentes en las aguas brutas procedentes de las depuradoras de Venta Alta, Lekue, Igorre y Durango, todas ellas en Vizcaya y de la de Agoncillo en La Rioja. En ninguna de ellas se encontró la presencia de arcillas, como puede verse en los difractogramas recogidos en las figuras 23 y 24. Estos resultados indican que la presencia de arcillas en las aguas, no pueden ser la responsable de la retención de los radionucleidos en el filtro de arena.

3.3. Retención y elución de Cs y Sr por arenas y zeolitas

Los resultados obtenidos en la experiencia de elución del cesio por una columna de arena son los que se muestran en la figura 25.

En la citada figura 25 puede observarse que la retención decrece paulatinamente desde el 100% hasta valores próximos a cero, cuando el volumen de agua circulada se aproxima a 1 litro, siendo este resultado relativamente independiente del flujo. Por ello, puede concluirse que se produce una retención del Cs en la arena, del orden de 1,75 µg de Cs⁺ por gramo de arena. En términos radiológicos esto supone una capacidad de retención de aproximadamente 3,2 MBq, o 86,5 µCi de ¹³⁷Cs por gramo de arena.

Adicionalmente, se efectuaron una serie de ensayos para determinar la retención del cesio, cuando éste se encuentra disuelto en compañía de otros cationes. Para ello, se ensayó con el agua de la red pública de Bilbao y con el agua obtenida por mezcla de agua destilada y agua de la red pública, al 50%. Los resultados obtenidos se muestran en la figura 26.

En la figura 26 puede observarse la competencia existente por los lugares de retención de los cationes pre-

Figura 23. Difractograma del agua bruta de Lekue

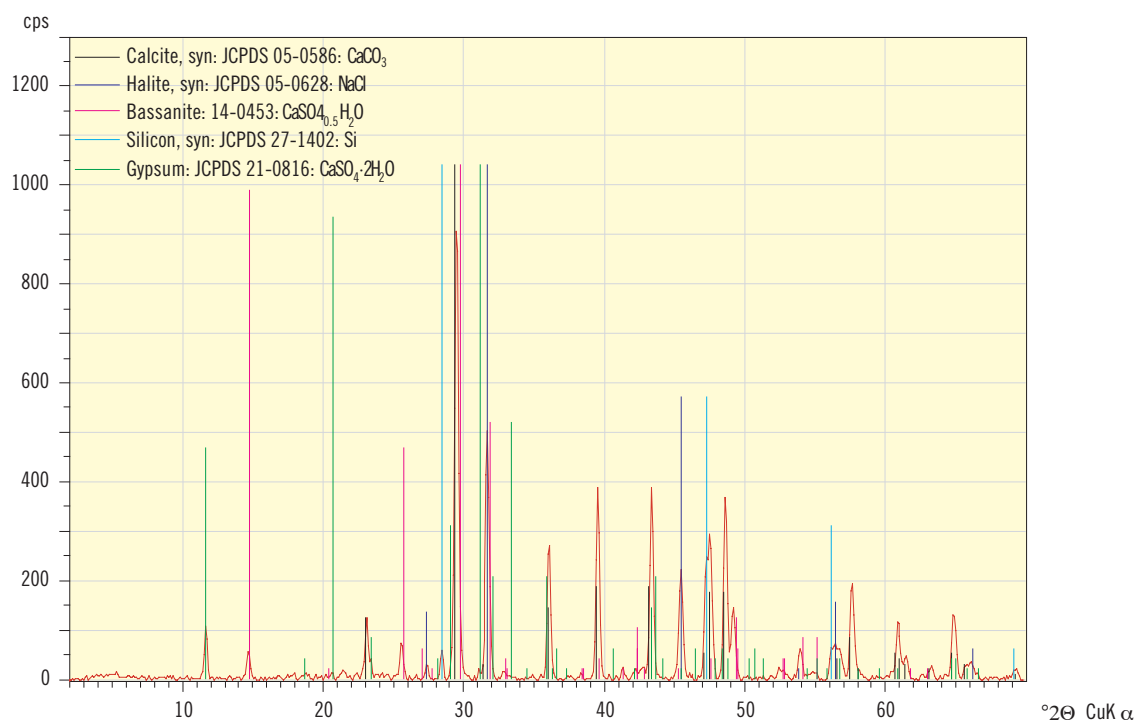


Figura 24. Difractograma del agua bruta de Durango

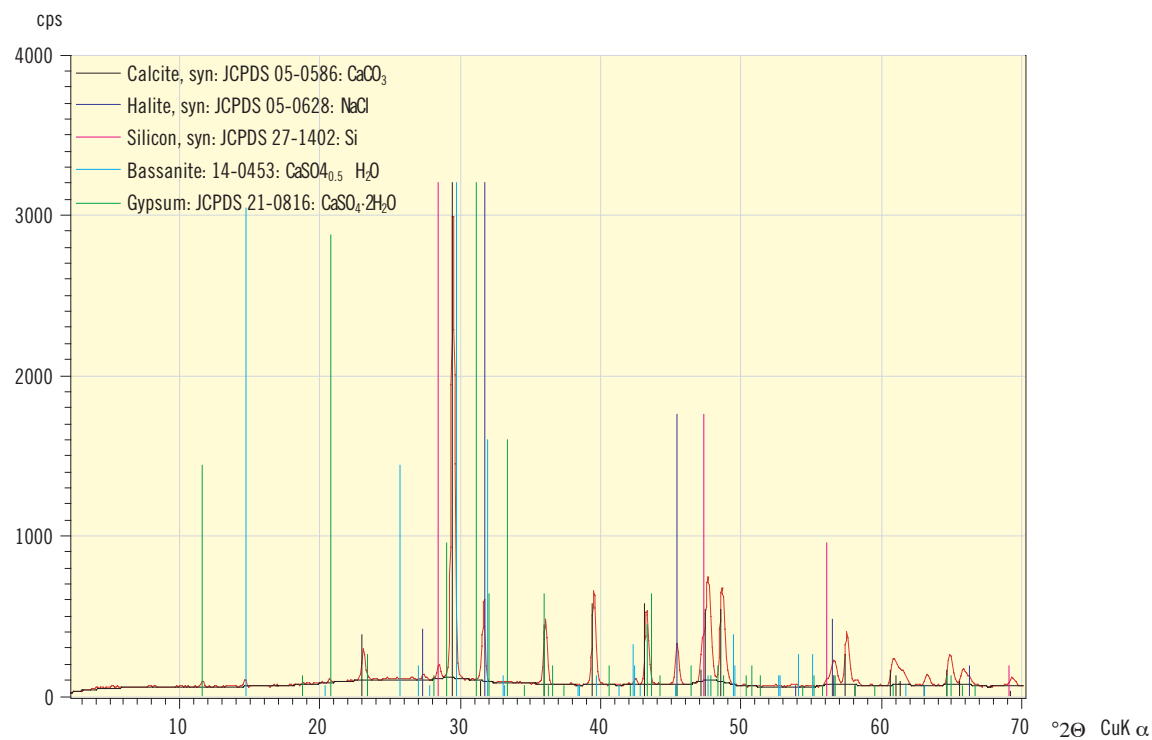


Figura 25. Evolución de la retención de cesio en la arena

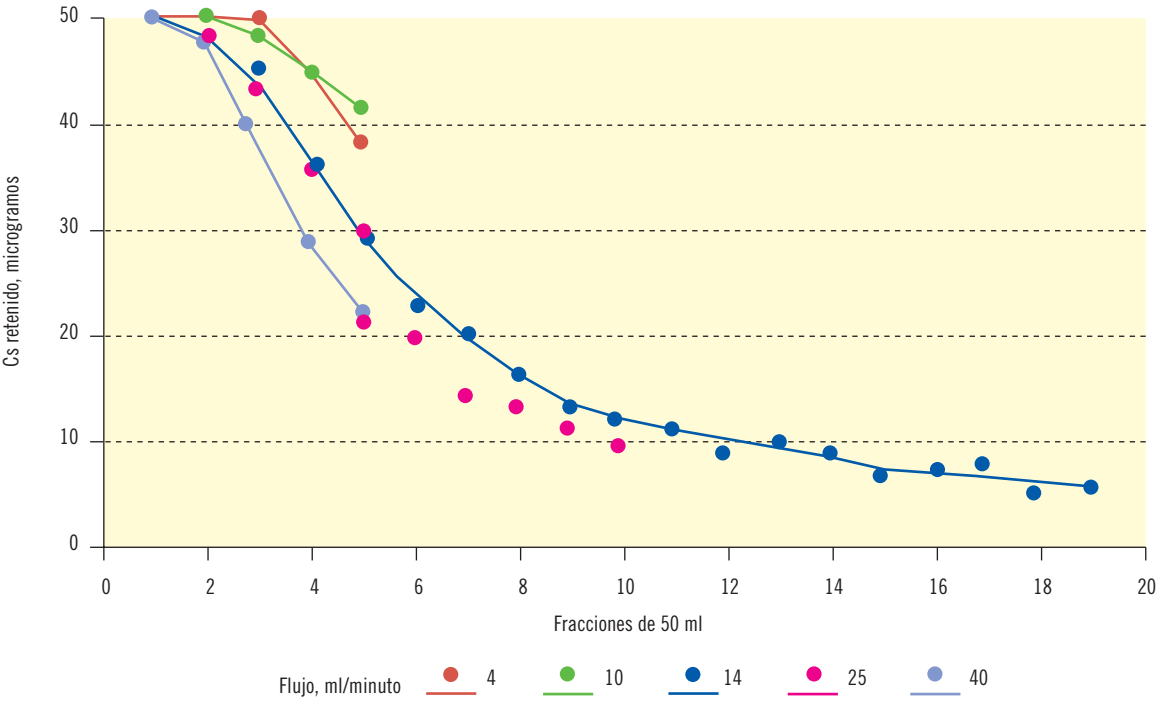


Figura 26. Efecto del cesio retenido en la arena utilizando diferentes tipos de aguas

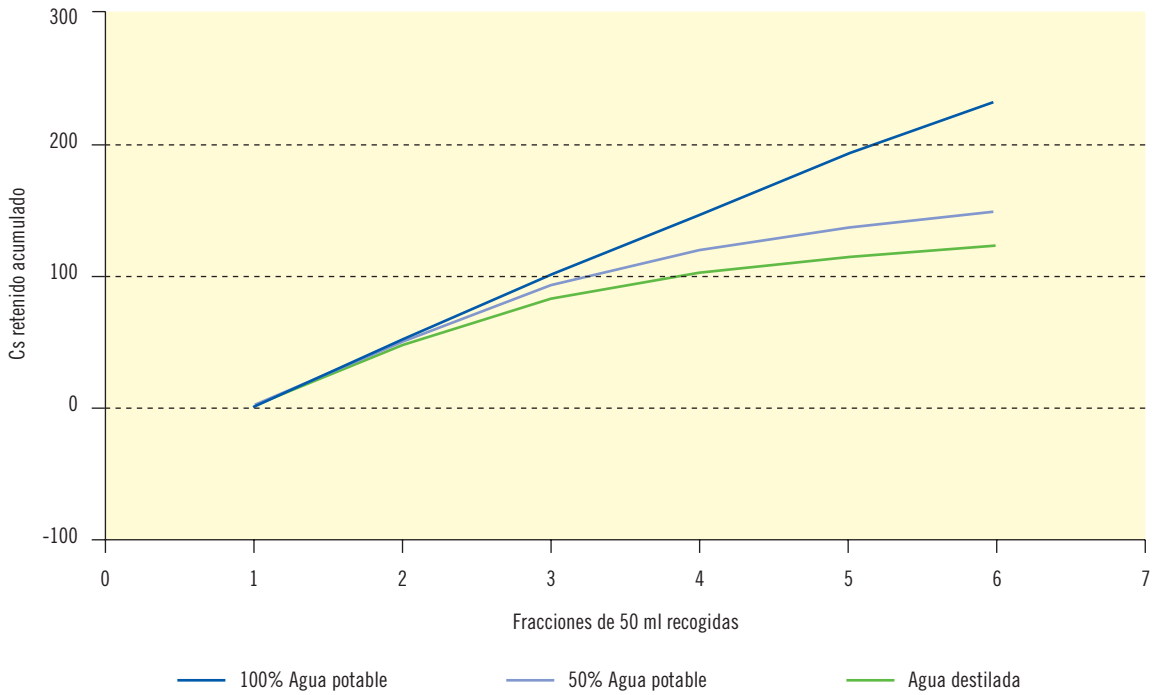
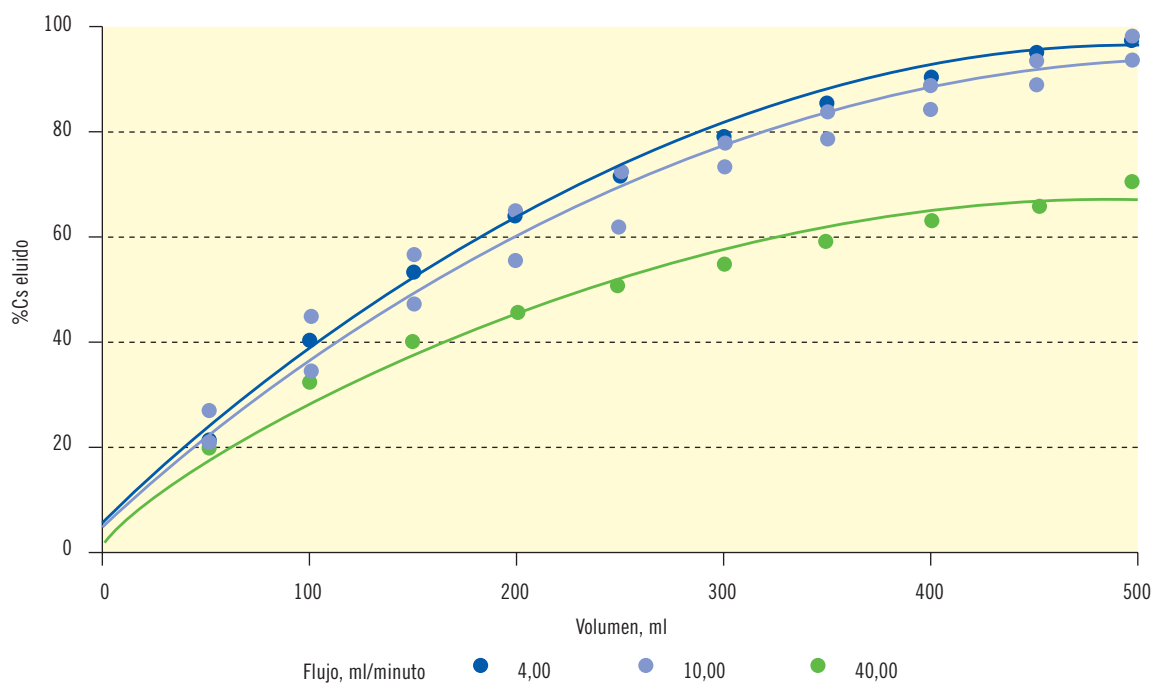


Figura 27. Cesio eluido mediante la utilización de disolución de 500 ppm de sodio



sentes en el agua, pudiendo señalarse que la retención se reduce hasta aproximadamente un 35% de la máxima, dependiendo de la presencia de otros cationes en la muestra acuosa.

Finalmente, y con objeto de analizar el modo de reciclar las arenas empleadas, se ensayó la elución del cesio retenido en éstas. Se observó que empleando una solución de 500 ppm de Na^+ , en forma de NaCl , la fracción del cesio retenido que es eluido adopta los valores recogidos en la figura 27.

En la anterior figura puede observarse que los bajos caudales favorecen la elución y que ésta puede llegar a ser de casi el 100%.

Dentro de las actividades encaminadas a investigar el comportamiento de la arena como agente adsorbente de los cationes presentes en disolución, se llevó a cabo una experiencia diseñada para conocer las causas de

tal comportamiento y para ello se procedió en primer lugar a realizar un análisis de los diferentes tipos de granos contenidos en la arena, mediante microscopía electrónica de barrido (SEM), encontrando la presencia en la misma, como puede verse en los resultados recogidos en la figura 28, de silicatos de aluminio, potasio y hierro.

Seguidamente se contactó con el suministrador de las arenas, que facilitó su origen. Éstas provienen de un depósito sedimentario del período Holoceno de la era Cuaternaria que proceden de areniscas. Por ello están compuestas por cuarzo (18-50%), feldespatos (9-12%), que son silicatos con estructura tetraédrica tridimensional y minerales accesorios (<2%), lo que permite explicar el comportamiento de la arena empleada en el filtro, en base a retenciones por desequilibrio de cargas superficiales y a la existencia de cationes intercambiables. Se determinó que la capacidad de cambio de esta arena es de 3,12 mEq/100 g.

Figura 28. Microscopía electrónica de barrido (SEM) para la arena

Spectrum processing: No peaks omitted					
Processing option: All elements analysed					
Number of iterations = 2					
Standard:					
O K SiO2 1-Jun-1999 12:00 AM					
Al K Al2O3 1-Jun-1999 12:00 AM					
Si K SiO2 1-Jun-1999 12:00 AM					
Element	App Conc.	Intensity Corr.	Weight %	Weight% Sigma	Atomic%
O K	2,63	1,1655	2,26	0,08	63,62
Al K	0,72	1,0219	0,70	0,03	11,75
Si K	1,38	0,9022	1,54	0,04	24,64
Totals			4,50		
Comment: Partícula gris					
Spectrum processing: No peaks omitted					
Processing option: All elements analysed					
Number of iterations = 4					
Standard:					
O K SiO2 1-Jun-1999 12:00 AM					
Al K Al2O3 1-Jun-1999 12:00 AM					
Si K SiO2 1-Jun-1999 12:00 AM					
Fe K Fe 1-Jun-1999 12:00 AM					
Element	App Conc.	Intensity Corr.	Weight %	Weight% Sigma	Atomic%
O K	75,58	1,3444	56,96	0,39	75,78
Al K	1,50	0,9520	1,58	0,07	1,25
Si K	29,38	0,9746	30,14	0,17	22,84
Fe K	0,27	0,7962	0,34	0,12	0,13
Totals			89,03		
Comment: Partícula beige					

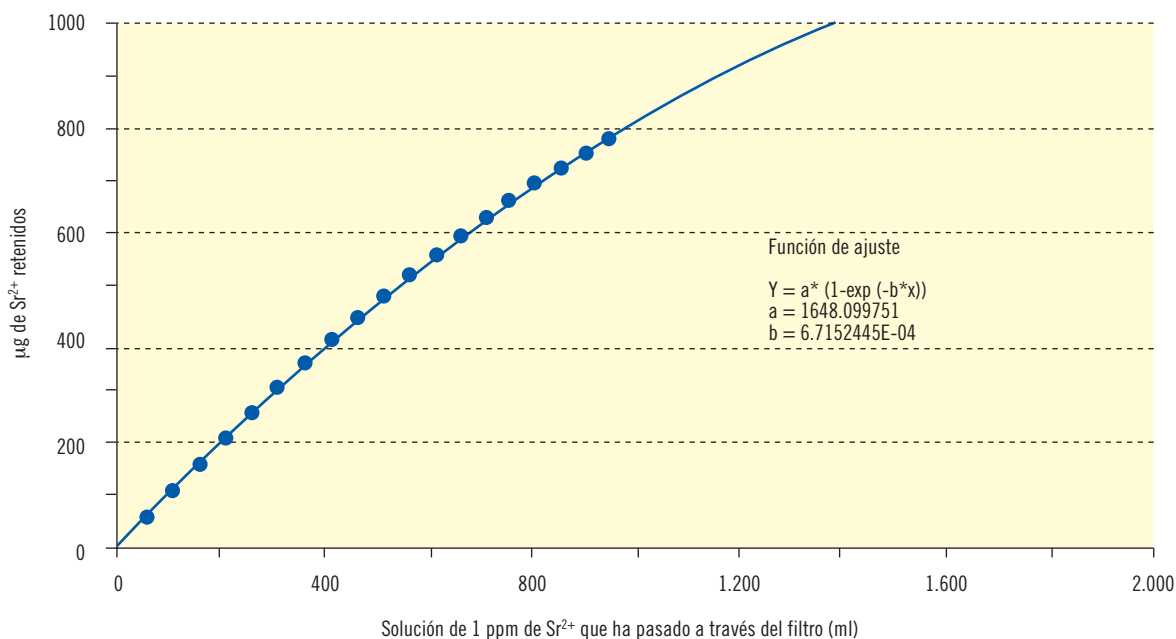
Figura 29. Microscopía electrónica de barrido (SEM) para la arena (continuación)

Project 1 11/30/04 10:14:56 AM Spectrum processing: Peak possibly omitted: 2.270 KeV Processing option: All elements analysed Number of iterations = 4					
Standard:					
O K SiO2 1-Jun-1999 12:00 AM					
Al K Al2O3 1-Jun-1999 12:00 AM					
Si K SiO2 1-Jun-1999 12:00 AM					
K K MAD-10 Feldspar 1-Jun-1999 12:00 AM					
Element	App Conc.	Intensity Corr.	Weight %	Weight% Sigma	Atomic%
O K	73,64	13,521	54,47	0,37	77,08
Al K	1,15	0,9462	1,21	0,07	1,02
Si K	26,16	0,9736	26,87	0,16	21,66
K K	0,42	0,9933	0,43	0,05	0,25
Totals			82,98		
Comment: Partícula blanca					

Tras finalizar el ensayo con cesio, se inició el ensayo relativo al comportamiento del estroncio. Ensayo que se realizó en idénticas condiciones a las ya descritas para el cesio. Un análisis de los resultados obtenidos nos permite concluir que la retención de este elemento es más elevada que la encontrada para el cesio y que puede cifrarse en 8,25 μg de Sr^{++} por gramo de arena, con un comportamiento relativo a la saturación del proceso y a la influencia del caudal, similar al observado para el cesio y que se muestra en la figura 30.

La retención observada, en términos radiológicos, supone un valor de 42 MBq de ^{90}Sr por gramo de arena, o lo que es lo mismo 1,1 mCi/g. En relación con la elución, se encontró que ésta no se produce cuando el agente es agua destilada, pero que es del 62%, cuando se emplea agua potable de la red de Bilbao o una solución de NaCl, que contiene 500 ppm de Na^+ .

Figura 30. Evolución de la retención de estroncio en la arena



Finalmente, y con el objetivo de completar los datos disponibles, se efectuó un ensayo destinado a valorar la retención y elución del cesio y del estroncio empleando zeolita AW500, en lugar de la arena. En relación con la retención se observó que ésta es del 100%, cuando uno o los dos elementos están disueltos en agua destila-

da, mientras que estos elementos no son eluidos de la zeolita, salvo que se utiliza una disolución de NaCl, con una concentración de $100 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$, obteniéndose en tal caso una elución del 72% para el estroncio y del 11% para el cesio.

RESULTADOS



1. Radionucleidos naturales

1.1. Ensayos realizados en el laboratorio

Los resultados obtenidos para todas las aguas ensayadas a pequeña escala, en el laboratorio, indican que las mejores descontaminaciones radiactivas para el uranio se producen a pH 6, obteniendo unas eficiencias de eliminación entre el 60% y el 90%, dependiendo de las características químicas del agua concreta ensayada. Por su parte, para el radio, el rango de valores del pH de 9,5 a 10, ha resultado ser el óptimo para conseguir las mejores eficiencias de eliminación, dentro del rango 60-90%. Estas diferencias cuantitativas en el grado de eliminación conseguido para el uranio y el radio en las aguas analizadas, debe asociarse a sus distintas características físico químicas. De hecho, se ha observado que tanto la mayor concentración de calcio y de magnesio en la disolución, como la de los bicarbonatos, perjudican la adsorción de la especie predominante del uranio a pH 6: $\text{UO}_2\text{CO}_3(\text{aq})$. Por otra parte, los resultados obtenidos a pH 7,5 y entre 9,5-10 son los que cabría prever para este catión radiactivo, ya que la adsorción de las especies de uranio están perjudicadas por repulsiones electrostáticas¹¹. Así mismo, la presencia de cationes alcalinotérreos, tales como el calcio y el magnesio en el agua, al igual que aniones como el sulfato, bicarbonato y carbonato, se ha observado que ayudan a mejorar la adsorción y/o la coprecipitación a pHs básicos, de la especie neutra predominante del radio en tales condiciones, $\text{RaCO}_3(\text{aq})$. En la figura 31, se muestra a modo de ejemplo para el agua de Torrequemada, la importancia que tiene el pH al que se lleva a cabo la coagulación del agua, en la presencia de las distintas especies de uranio y radio, que condicionan su mayor o menor eliminación, mediante los reactivos adicionados en el proceso de potabilización.

Por otra parte, es necesario señalar que el uso de un reactivo complementario, como el permanganato potásico, que ha sido utilizado en algunos ensayos, además de los coagulantes normalmente empleados, no se muestra efectivo en la mejora de la descontaminación radiactiva de los radionucleidos estudiados. Este resultado pone de manifiesto que las dosis en las que se utiliza normalmente este reactivo en los procesos de potabilización, no son suficientes para inducir un incremento significativo en la adsorción efectiva del radio sobre la especie de dióxido de manganeso (MnO_2), que se forma en disolución¹².

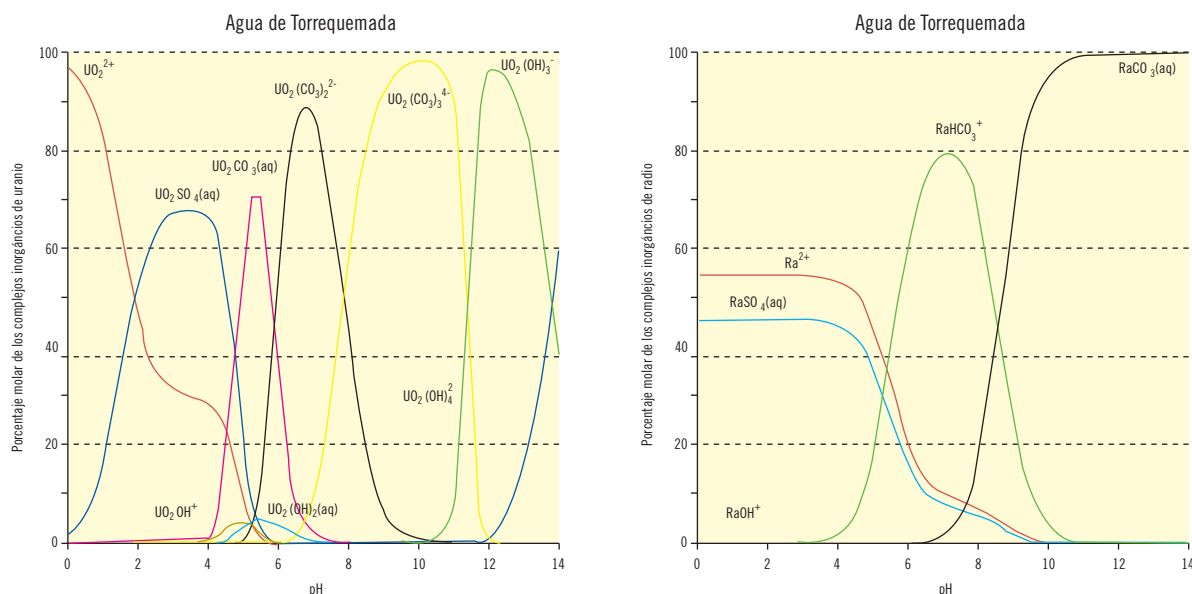
1.1.1. Tendencias extraídas de los ensayos de coagulación floculación

Con el fin de clarificar el significado y la dependencia de los resultados obtenidos en la descontaminación de los niveles radiactivos naturales presentes en las aguas analizadas, se han establecido una serie de correlaciones entre el grado de descontaminación radiactiva obtenida para cada uno de los radionucleidos considerados y algunos de los principales parámetros físico químicos que caracterizan a las aguas ensayadas. Para obtener la mayor generalización posible en las relaciones así obtenidas, se han utilizado también los datos de descontaminación logrados para dos aguas de origen subterráneo y con una presencia cuantificable de radionucleidos de origen natural, a las que se les aplicó el mismo procedimiento experimental que a las utilizadas en el presente proyecto, y que corresponden a las poblaciones de Malcocinado y Alconchel y que fueron empleadas en un estudio anterior a nivel de *jar test*. Además, hay que señalar que se ha desechado el valor correspondiente a la descontaminación producida para el radio en el agua de Manjabálago, por resultar un valor de descontaminación radiactiva

¹¹ Ho C. H. and Miller N. H., 1986. "Adsorption of uranyl from bicarbonate solution onto hematite particles". *J. Coll. Interface Sci.*, 110, 165-171.

¹² Thomas J. Sorg, 1990. "Removal from Uranium from Drinking water by Conventional Treatment Methods" in *Radon, Radium and Uranium in Drinking Water* edited by C. R. Cothorn, P. A. Rebers Lewis Publishers, INC.

Figura 31. Diferentes especies de uranio (izquierda) y de radio (derecha) predominantes en las aguas, en función del pH de coagulación para el agua de Torrequemada



anómalo, en el sentido de ser muy superior al esperable por la tendencia general.

Las relaciones existentes entre el porcentaje de eliminación conseguido, expresado en tanto por ciento (%), y el residuo seco producido por las aguas ensayadas y la conductividad, son las reflejadas por las ecuaciones que seguidamente se muestran:

$$\% \text{Elim. } ^{226}\text{Ra} = (49 \pm 15) + (0,046 \pm 0,012) \times \text{residuo seco (mg/l)} \quad r = 0,72$$

$$\% \text{Elim. } ^{238}\text{U} = (86 \pm 12) - (0,031 \pm 0,009) \times \text{residuo seco (mg/l)} \quad r = -0,57$$

$$\% \text{Elim. } ^{234}\text{U} = (85 \pm 8) - (0,026 \pm 0,006) \times \text{residuo seco (mg/l)} \quad r = -0,64$$

$$\% \text{Elim. } ^{226}\text{Ra} = (43 \pm 18) + (39 \pm 10) \times \text{Conductividad (mS/cm)} \quad r = 0,72$$

$$\% \text{Elim. } ^{238}\text{U} = (91 \pm 12) - (28 \pm 7) \times \text{Conductividad (mS/cm)} \quad r = -0,65$$

$$\% \text{Elim. } ^{234}\text{U} = (89 \pm 8) - (24 \pm 4) \times \text{Conductividad (mS/cm)} \quad r = -0,74$$

Como se puede observar, puede indicarse que de forma general la eliminación del ^{226}Ra está beneficiada por la presencia de sales y de sólidos disueltos en las aguas, mientras que a los radionucleidos ^{238}U y ^{234}U , dicha presencia les afecta negativamente. En las ante-

riores ecuaciones, la ordenada en el origen está indicando la eliminación mínima y máxima, respectivamente, conseguible por el proceso de coagulación floculación, que para el caso del radio se encuentra en torno al 50%, mientras que para el uranio, es aproximadamente de un 85%. Estas dependencias genéricas del grado de descontaminación es necesario concretarlas a partir del análisis de otros parámetros más claramente delimitantes de las características de las aguas, ya que la conductividad y el residuo seco son indicadores generales de la presencia de sólidos y de sales disueltas en las mismas, pudiendo estar enmascarando la presencia de otros factores más importantes. Por ello, se ha estudiado la influencia que ejercen sobre la eliminación de los radionucleidos ^{226}Ra , ^{238}U y ^{234}U las concentraciones de calcio y magnesio, expresando éstas en forma de dureza (mg/l de CaCO_3), mediante un ajuste lineal según las siguientes expresiones:

$$\% \text{Elim. } ^{226}\text{Ra} = (43 \pm 12) + (0,098 \pm 0,015) \times \text{dureza (mg/l de CaCO}_3\text{)} \quad r = 0,85$$

$$\% \text{Elim. } ^{238}\text{U} = (82 \pm 12) - (0,039 \pm 0,016) \times \text{dureza (mg/l de CaCO}_3\text{)} \quad r = -0,44$$

$$\% \text{Elim. } ^{234}\text{U} = (82 \pm 9) - (0,032 \pm 0,012) \times \text{dureza (mg/l de CaCO}_3\text{)} \quad r = -0,49$$

Como se puede apreciar, las eliminaciones de los radionucleidos considerados están correlacionadas con la dureza del agua, influyendo ésta de una forma directamente proporcional para el radionucleido ^{226}Ra , e inversamente proporcional para la eliminación de los radionucleidos ^{238}U y ^{234}U .

Por otra parte, al efectuar un ajuste lineal de los porcentajes de eliminación obtenidos, siempre bajo las mejores condiciones de pH, con respecto a la concentración de bicarbonatos presentes en las aguas tratadas, se obtienen los resultados que se muestran a continuación:

$$\begin{aligned} \% \text{Elim. } ^{226}\text{Ra} &= (-21 \pm 23) + (0,30 \pm 0,03) \times \text{bicarbonatos (mg/l)} \quad r=0,92 \\ \% \text{Elim. } ^{238}\text{U} &= (108 \pm 15) - (0,128 \pm 0,020) \times \text{bicarbonatos (mg/l)} \quad r=-0,79 \\ \% \text{Elim. } ^{234}\text{U} &= (103 \pm 9) - (0,104 \pm 0,013) \times \text{bicarbonatos (mg/l)} \quad r=-0,86 \end{aligned}$$

Los resultados de estas últimas correlaciones lineales son de una relativa alta calidad, lo que indica que la concentración de bicarbonatos es un parámetro muy limitante a la hora de obtener mejores o peores eliminaciones para los radionucleidos aquí sistemáticamente estudiados. Concretamente, la presencia de los bicarbonatos ayuda a la eliminación del ^{226}Ra y perjudica a la eliminación de los radioisótopos del uranio, ^{238}U y ^{234}U .

1.2. Ensayos realizados en la planta piloto

Una vez se han obtenido las condiciones para las que se producen los mejores resultados a nivel de experiencias realizadas en el laboratorio, se ha procedido a verificar la reproducibilidad de los mismos cuando se tratan relativamente grandes volúmenes de agua, realizando para ello ensayos en una planta piloto a escala. Las condiciones experimentales ensayadas en la citada planta se muestran en la tabla 2.

Los resultados obtenidos para los ensayos efectuados con las aguas tratadas en la planta potabilizadora a escala se presentan resumidos en la tabla 3. En ella se detallan las eficiencias de descontaminación obtenidas, expresadas en términos de porcentaje, para las distintas aguas ensayadas, a los dos valores del pH experimentados, antes y después de habérseles aplicado el proceso de filtración.

Para ésta última etapa del tratamiento, se indican los resultados obtenidos tras ensayar diversas alternativas como lechos filtrantes. Así, en la citada tabla se puede observar que los mejores resultados de descontaminación radiactiva para el uranio se producen, como ya se había visto en las experiencias efectuadas a pequeña escala en el laboratorio, a pH 6, obteniendo eficiencias de descontaminación del orden del 90%. Por su parte,

Tabla 2. Condiciones de trabajo empleadas para la realización de los ensayos realizados en la planta piloto, para las aguas con contenidos medibles de radionucleidos naturales

Agua	pHs de trabajo	Coagulantes	Floculantes	Acondicionamiento del pH
Torquemada	6 y 10	Sulfato férrico (114 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,3 mg/l)	NaOH y HCl
Acehuche	6 y 10	Sulfato férrico (114 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,3 mg/l)	NaOH y HCl
Barcience	6 y 9,5	Sulfato férrico (114 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,3 mg/l)	NaOH y HCl
Manjabálago	6 y 9,5	Sulfato férrico (114 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,3 mg/l)	NaOH y HCl
Cualedro	6	Sulfato férrico (110 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25 mg/l)	NaOH
Lumbrales	6	Sulfato férrico (110 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25 mg/l)	-
Burgas	6	Sulfato férrico (110 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25 mg/l)	HCl
Gallegos de Argañán	6	Sulfato férrico (110 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25 mg/l)	HCl

Tabla 3. Niveles de descontaminación obtenidos, en la planta piloto, para los radionucléidos ^{226}Ra , $^{234,238}\text{U}$ presentes en el agua

pH	Muestra	% Eliminación																							
		^{234}U								^{238}U								^{226}Ra							
		TQ	AC	BA	MA	CU	LU	BU	GA	TQ	AC	BA	MA	CU	LU	BU	GA	TQ	AC	BA	MA	CU	LU	BU	GA
6	Antes de arena	≅90	≅90	≅60	≅90	≅100	≅100	≅25	≅90	≅90	≅90	≅60	≅95	≅100	≅100	≅25	≅90	≅70	≅30	≅30	30-50	≅0	≅70	≅30	≅40
	Después de arena	>95	>95	≅70	≅85	≅95	≅0	≅0	≅85	>95	≅90	≅70	90	≅95	≅0	≅0	≅85	>95	≅90	≅30	≅30	≅0	≅80	≅50	≅70
	Con bicapa arena-zeolita					≅45	≅0	≅0	≅75			-		≅45	≅0	≅0	≅75			-		≅100	≅100	≅100	≅100
9.5-10	Antes de arena	70-80	60-70	≅95	≅90				-	70-80	60-70	≅95	≅90			-		≅95	≅95	70-80	20-30			-	
	Después de arena	97-98	89-95	≅95	≅90					97-98	73-78	≅95	≅90					>95	>95	≅80	≅80				

Torrequemada (TQ), Acehuche (AC), Barciencia (BA), Manjabálago (MA), Cualedro (CU), Lumbrales (LU), Burgas (BU) y Gallegos de Argañán (GA)

el pH óptimo para la descontaminación del radio es básico, en el entorno de 9,5-10, siendo el nivel de eliminación conseguible del orden del 80-90%.

Debe destacarse que en todos los casos, el tratamiento realizado con las aguas en la planta potabilizadora a escala, beneficia el grado de descontaminación radiactiva producida, tanto para el uranio como para el radio, hecho éste que es fácilmente deducible al comparar los resultados de la eficiencia de descontaminación producidos en la planta a escala con los obtenidos en los ensayos en el laboratorio. Esto puede deberse principalmente a dos razones: la primera, porque la adsorción es mayor, ya que el agua tratada en la planta piloto está en contacto con una mayor cantidad de flóculos que en las experiencias *jar-test*, los que se están formando y los ya formados con anterioridad, y la segunda porque el proceso de coprecipitación está beneficiado al haber una gran cantidad de precipitado formado previamente, que actúa como núcleo de condensación en la formación de los nuevos precipitados. Por último, ha de señalarse de nuevo que los diferentes grados de descontaminación radiactiva de uranio o radio que se consiguen para las distintas aguas, aún cuando se apliquen las mismas condiciones experimentales, se debe principalmente a las diferentes características físico químicas que poseen dichas aguas.

Siguiendo con el análisis de los resultados recopilados en la tabla 3, es necesario señalar que por lo que respecta a la arena, ésta actúa de forma beneficiosa para la eliminación del radio contenido en la mayoría de las aguas, produciéndose en algunos tratamientos la redisolución parcial de los flóculos atrapados en la arena, cuando se opera a dos diferentes valores del pH.

En cuanto a la descontaminación de radio que se consigue en la etapa de filtración, con filtros que alternan las capas de arena y de zeolitas, puede verse que la eficiencia finalmente conseguida es en estos casos altísima, prácticamente del 100%.

Para valorar los resultados obtenidos al tratar de eliminar el uranio y el radio presente en las aguas ensayadas durante el proceso de potabilización de las mismas, llevado a cabo en una planta piloto a escala, seguidamente se calcula la dosis que incorporaría por ingesta un individuo adulto¹³ que consumiese dichas aguas, en caso de aplicar o no el tratamiento propuesto. De los resultados que se obtienen se deduce

¹³ ICRP, International Commission on Radiological Protection, 1975. Report of the Task Group on Reference Man. ICRP N° 23, Pergamon Press, Oxford.

que se logra producir la práctica eliminación de la dosis incorporada por ingesta durante el tratamiento de potabilización propuesto para las aguas, ya que la dosis media eliminada es del 90% y siendo el rango obtenido del 63 al 100% de dosis eliminada, dependiendo de las características físico-químicas de las aguas tratadas.

1.3. Especiación de los fangos producidos en el tratamiento de aguas con radionucleidos naturales

Los resultados obtenidos en la especiación realizada para el ^{234}U y ^{226}Ra presentes en los lodos producidos al tratar el agua de Torrequemada, a pH 6 y 9,5, se recopilan resumidamente en las figuras 32 y 33, respectivamente. Antes de proceder a su análisis, debe destacarse que se ha verificado que éstos resultados son perfectamente homologables para las restantes aguas ensayadas que poseían radionucleidos naturales.

Los resultados obtenidos para el uranio muestran que éste se localiza, para los dos pHs estudiados, en las fracciones carbonatada (3) y reducible (4), en torno al 47% y 50% respectivamente, ver figura 32. Este resultado indica que el uranio está asociado a los carbonatos y a distintos tipos de óxidos metálicos, principalmente de hierro y manganeso.

Para el caso del ^{226}Ra , los resultados producidos tras el análisis de las distintas fracciones obtenidas en la especiación química de los lodos generados, a los pH 6 y 9,5, se muestran en la figura 33. Como se puede apreciar en la citada figura, aproximadamente el 90% del radio se encuentra en la fracción identificada como reducible (4), siendo los resultados para las demás fracciones muy bajos, exceptuando en todo caso a la fracción carbonatada (3), ver figura 33, en la cual se localiza para el pH 6 un 9% de la actividad total existente en el fango y para el pH 9,5, tan sólo un 4%. Este resultado indica que el radio está asociado a los óxidos metálicos de hierro y manganeso, al igual que parcialmente sucedía en el caso del uranio.

2. Radionucleidos artificiales

2.1. Ensayos realizados en la planta piloto

Las condiciones en que las diferentes aguas han sido ensayadas en la planta piloto fueron determinadas bien empleando las mismas que se emplean en la planta de potabilización real cuyo comportamiento se pretende conocer o bien mediante ensayos *jar-test* realizados en el laboratorio siguiendo la norma ASTM D2035-80⁶.

Así, las condiciones de trabajo empleadas en la planta piloto para las diferentes aguas estudiadas han sido las detalladas en la tabla 4.

Seguidamente se reseñan los resultados obtenidos, cuantificados como porcentajes de eliminación de la actividad que poseía el agua para el radionucleido que en cada caso se especifica y en las condiciones de tratamiento indicadas.

Xerta

Se trata de un agua mixta, tanto desde el punto de vista de cationes como de aniones, en cuya potabilización se emplea cloruro férrico como coagulante.

El ensayo se realiza por duplicado. En un primer ensayo se simulan las condiciones de operación de la planta y en un segundo ensayo se realiza una adición de zeolita y se introduce agitación en la zona de coagulación, para intentar mantener la zeolita en suspensión.

⁶ ASTM, American Society for Testing and Materials, 1980. *A standard practice for coagulation-flocculation Jar test of water*. Designation D 2035-80. USA.

Figura 32. Especiación química del radionucleido ^{238}U presente en el fango generado durante la potabilización del agua de Torrequemada

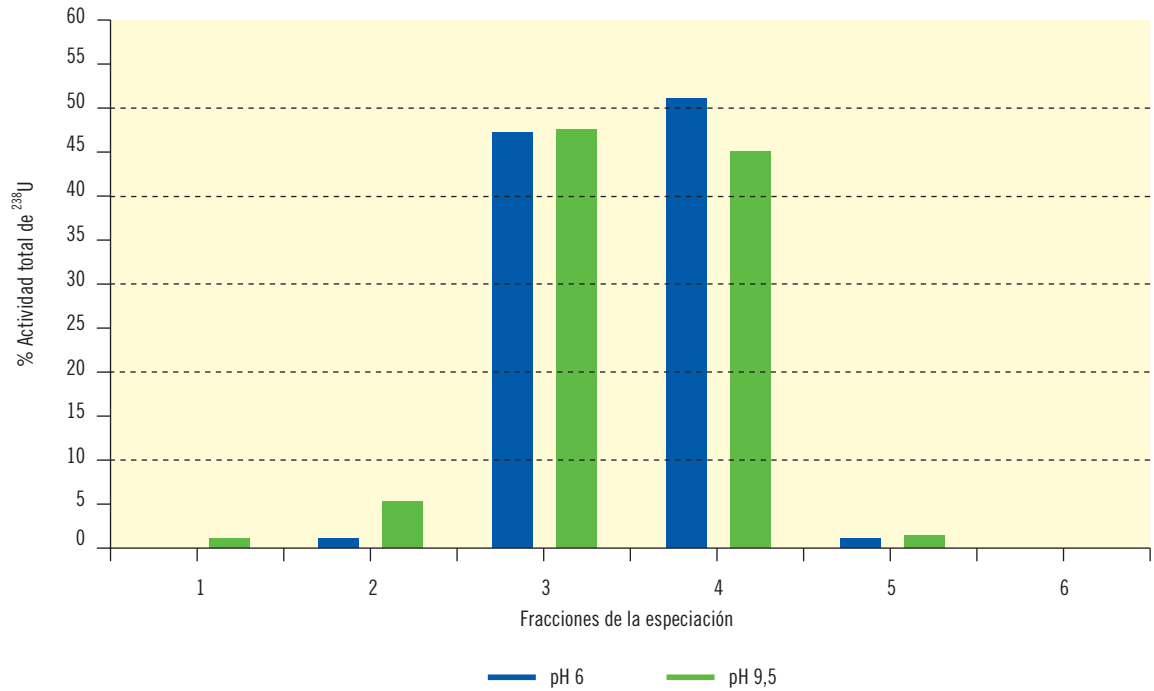


Figura 33. Especiación química, a pH 6 y pH 9,5, del radionucleido ^{226}Ra presente en el fango generado durante la potabilización del agua de Torrequemada

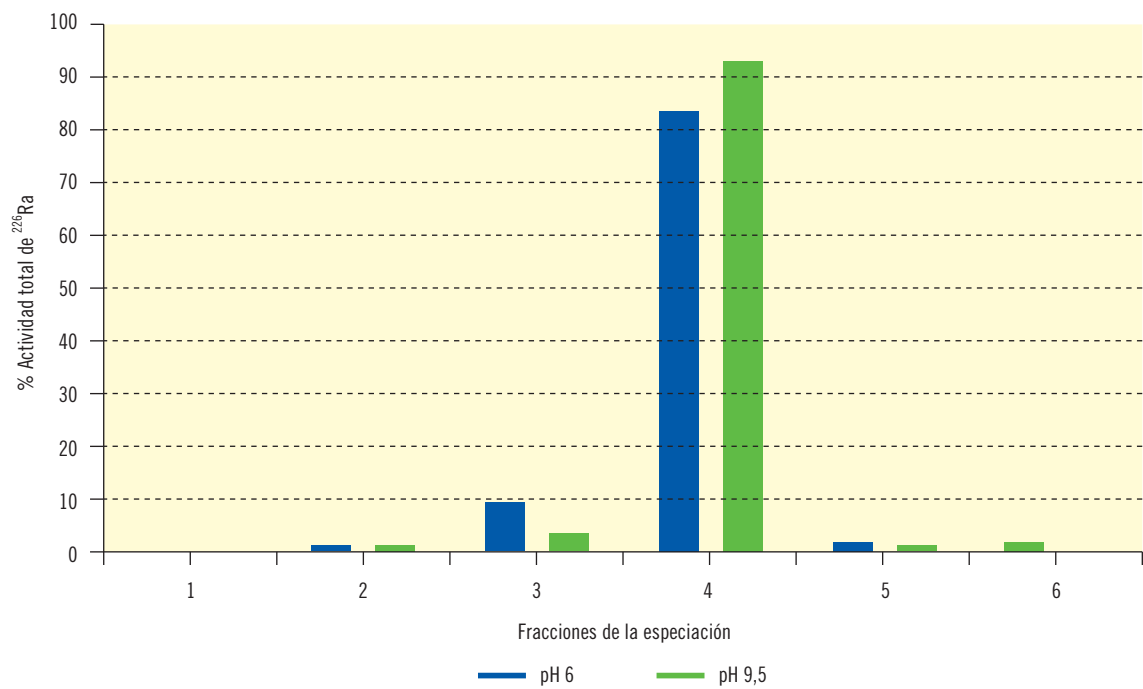


Tabla 4. Condiciones de trabajo empleadas para la realización de los ensayos realizados en la planta piloto, para las aguas con contenidos medibles de radionucleidos artificiales

Agua	pH de trabajo	Coagulantes	Floculantes	Acondicionamiento del pH	Reactivos complementarios
Xerta	8,3	Cloruro férrico al 40% (11 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,15 mg/l)	-	Zeolita AW-500 200 mesh ASTM
Agoncillo	7,5	Policloruro básico de aluminio al 18% de Al_2O_3 (40 mg/l)	-	-	Zeolita AW-500 200 mesh ASTM
	8,5	Sulfato férrico $Fe_2(SO_4)_3 \cdot 9H_2O$ (110 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,25 mg/l)	NaOH	Zeolita AW-500 200 mesh ASTM
Valencia	7,5 y 9,5	Policloruro de aluminio PAX XL-63 (90 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,3 mg/l)	NaOH y HCl	
Tarancón	7,5 y 9,5	Policloruro básico de aluminio DKFLOC (15 mg/l)	-	NaOH	
Alicante	9,5 y 10	Sulfato aluminio (40 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,33 mg/l) (0,25 mg/l)	Na_2CO_3	
Almaraz	7,2 y 9,5	Sulfato aluminio (70 mg/l)	Prosedim ASP25 (0,26 mg/l)	NaOH	

Sin Zeolita

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 40%, ^{137}Cs : 5%, ^{85}Sr : 6%

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua no filtradas, conteniendo por tanto microcoágulos que a su vez contienen cantidades no desdeñables de alguno de los radionucleidos utilizados en el ensayo.

Si se consideran muestras de agua filtrada, entonces las descontaminaciones son:

^{241}Am : 97%, ^{137}Cs : 8%, ^{85}Sr : 6%

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 99%, ^{137}Cs : 73%, ^{85}Sr : 10%

Con Zeolita

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 47%, ^{137}Cs : 29%, ^{85}Sr : 18%

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua no filtradas, conteniendo por tanto microcoágulos que a su vez contienen cantidades no desdeñables de alguno de los radionucleidos presentes en el agua.

Si se consideran muestras de agua filtrada, entonces las descontaminaciones son:

^{241}Am : 98%, ^{137}Cs : 25%, ^{85}Sr : 17%

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 98%, ^{137}Cs : 72%, ^{85}Sr : 15%

Los resultados obtenidos ponen de manifiesto que el americio es eliminado de manera prácticamente absoluta en la clarificación del agua (98-99%) y que la eliminación es debida al proceso de coagulación.

El cesio también es eliminado de manera importante (72-73%). Sin embargo, en este caso la descontaminación es debida en gran medida a la actuación de la arena, pero no atribuible a la retención de coágulos, porque se observa que no se produce la misma cuando se determina el contenido en

muestras de agua filtrada, sino que actúa por fijación del radionucleido.

Sin embargo, el estroncio es eliminado en proporciones pequeñas (15%) que son debidas a la actuación de la zeolita y de la arena.

Agoncillo

Con el agua que se trata en esta planta se hicieron dos ensayos. El primero con los parámetros normales de operación de la misma y el segundo reemplazando el coagulante que emplea de forma rutinaria, fabricado en base aluminio por uno con base hierro, debido a que se ha observado en otras experiencias una aparentemente mayor efectividad de este último tipo de coagulante.

Por otro lado, ambos ensayos fueron realizados por duplicado. Una primera vez sin adiciones especiales y una segunda con adición de una zeolita.

Ensayo con aluminio

Sin zeolita

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 52%, ^{137}Cs : 12%, ^{85}Sr : 0%

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua no filtradas, conteniendo por tanto microcoágulos que a su vez contienen algunos de los radionucleidos objeto de estudio.

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 93%, ^{137}Cs : 66%, ^{85}Sr : <5%

Con zeolita

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 43%, ^{137}Cs : 21%, ^{85}Sr : 0%

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua no filtradas, conteniendo por tanto microcoágulos que a su vez contienen a algunos de los precipitados radionucleidos.

Si se consideran muestras de agua filtrada, entonces las descontaminaciones son:

^{241}Am : 98%, ^{137}Cs : 30%, ^{85}Sr : 0%

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 93%, ^{137}Cs : 68%, ^{85}Sr : <5%

Ensayo con hierro

Sin zeolita

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 75%, ^{137}Cs : 20%, ^{85}Sr : 15%

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua no filtradas, conteniendo por tanto microcoágulos que a su vez contienen algún tipo de presencia radiactiva.

Si se consideran muestras de agua filtrada, entonces las descontaminaciones son:

^{241}Am : 99%, ^{137}Cs : 30%, ^{85}Sr : 18%

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 99%, ^{137}Cs : 75%, ^{85}Sr : 20%

Con zeolita

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 77%, ^{137}Cs : 25%, ^{85}Sr : 18%

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua no filtradas, conteniendo por tanto microcoágulos que a su vez contienen algunos de los radionucleidos mencionados anteriormente.

Si se consideran muestras de agua filtrada, entonces las descontaminaciones son:

^{241}Am : 99%, ^{137}Cs : 30%, ^{85}Sr : 20%

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 99%, ^{137}Cs : 72%, ^{85}Sr : 18%

Los resultados obtenidos ponen de manifiesto que el americio es eliminado de manera prácticamente absoluta en la clarificación del agua (99%) y que la eliminación es debida al proceso de coagulación, siendo ligeramente más efectivo este proceso cuando se utilizan los coagulantes con base hierro.

El cesio también es eliminado de manera importante (75%). Sin embargo, en este caso dicha descontaminación es debida en gran medida a la actuación de la arena, pero no atribuible a la retención de los coágulos, porque ésta no se produce cuando se determina el contenido radiactivo en muestras de agua filtrada, sino que actúa por fijación del radionucleido. También para este radionucleido se observa una ligera mayor eficiencia asociada al empleo de coagulantes con base hierro.

Sin embargo, el estroncio es eliminado en proporciones pequeñas (18%), que son fundamentalmente debidas a la presencia del anión sulfato, ya que no se aprecia influencia de la zeolita y los resultados son comparables con los obtenidos al emplear cloruro férrico como coagulante con adición de zeolita.

La influencia que ejerce la zeolita es despreciable en el ensayo llevado a cabo utilizando como coagulante uno fabricado en base aluminio debido a su rápida decantación. Tampoco se observa ningún tipo de influencia apreciable en el caso del ensayo realizado con un coagulante en base hierro.

Valencia

Con el agua que se trata en esta planta se hicieron dos ensayos. El primero con los parámetros normales de

operación de la citada planta y el segundo empleando un valor más elevado para el pH.

Ensayo con pH en el intervalo 7 - 8

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 93 %, ^{137}Cs : 10%, ^{85}Sr : 13 %

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua filtradas.

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 94 %, ^{137}Cs : 83 %, ^{85}Sr : 15 %

Ensayo con pH en el intervalo 9 - 10

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 97 %, ^{137}Cs : 13 %, ^{85}Sr : 30 %

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua filtradas.

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 94 %, ^{137}Cs : 70%, ^{85}Sr : 35 %

Los resultados obtenidos ponen de manifiesto que el americio es eliminado de manera prácticamente absoluta en el tratamiento de clarificación del agua (94%) y que la eliminación es debida al proceso de coagulación.

El cesio también es eliminado de manera importante (70-80%). Sin embargo, en este caso la mencionada descontaminación es debida en gran medida a la actuación de la arena, pero no atribuible a la retención de los coágulos, sino que actúa por fijación del radionucleido. También parece observarse una pérdida de eficiencia al incrementar el pH.

Sin embargo, el estroncio es eliminado en proporciones tanto más significativas cuanto mayor es el pH al que se lleva a cabo el proceso.

Tarancón

Con el agua que se trata en esta planta se hicieron dos ensayos. El primero con los parámetros normales de operación de la mencionada planta y el segundo empleando un valor más elevado para el pH.

Ensayo con pH en el intervalo 7 - 8

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 99%, ^{137}Cs : 5%, ^{85}Sr : 13%

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua filtradas.

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 99%, ^{137}Cs : 99%, ^{85}Sr : 10%

Ensayo con pH en el intervalo 9 - 10

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 99%, ^{137}Cs : 10%, ^{85}Sr : 40%

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua filtradas.

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 99%, ^{137}Cs : 73%, ^{85}Sr : 45%

Los resultados obtenidos ponen de manifiesto que el americio es eliminado de manera prácticamente absoluta en el tratamiento de clarificación (99%) y que la eliminación es debida al proceso de coagulación.

El cesio también es eliminado de manera importante (75-99%). Sin embargo, en este caso la descontaminación lograda para este radionucleído es debida en gran medida a la actuación de la arena, pero no atribuible a la retención de los coágulos sino que actúa por fijación del radionucleído. También parece observarse una pérdida de eficiencia al incrementar el pH.

Sin embargo, el estroncio es eliminado en proporciones apreciablemente más altas a pH elevado. En este caso se alcanzan valores de hasta el 45%.

Alicante

Con el agua tratada en esta planta se hicieron dos ensayos, ambos para valores relativamente elevados del pH y con adición de carbonato sódico como acondicionador de pH, con objeto de analizar la influencia que podría ejercerse sobre el comportamiento del estroncio.

Ensayo con pH 9,5

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 98%, ^{137}Cs : 10%, ^{85}Sr : 55%

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua filtradas.

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 98%, ^{137}Cs : 10%, ^{85}Sr : 80%

Ensayo con pH 10

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 95%, ^{137}Cs : 75%, ^{85}Sr : 65%

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua filtradas.

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 94%, ^{137}Cs : 83%, ^{85}Sr : 85%

Se observa que el estroncio es eliminado en determinadas condiciones de trabajo, en una proporción muy importante, en el entorno del 85%.

Almaraz

Con el agua procedente de esta planta se hicieron dos ensayos. El primero con los parámetros normales de

operación de la citada planta y el segundo empleando un valor más elevado para el pH.

Ensayo con pH en el intervalo 7 - 8

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 93 %, ^{137}Cs : 11 %, ^{85}Sr : 18 %

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua filtradas.

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 95 %, ^{137}Cs : 95 %, ^{85}Sr : 20 %

Ensayo con pH en el intervalo 9 - 10

Antes del filtro de arena:

^{241}Am : 95 %, ^{137}Cs : 11 %, ^{85}Sr : 18 %

Las medidas se efectúan sobre muestras de agua filtradas.

Después del filtro de arena:

^{241}Am : 97 %, ^{137}Cs : 95 %, ^{85}Sr : 20 %

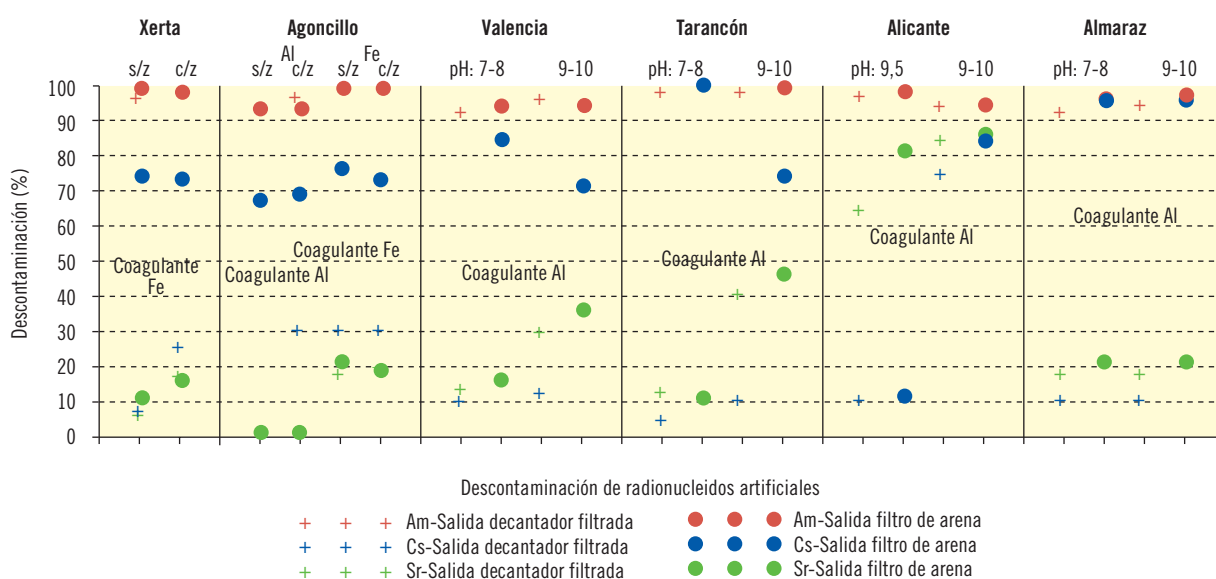
Los resultados obtenidos ponen de manifiesto que el americio es eliminado de manera prácticamente absoluta en el tratamiento de clarificación (97 %) y que la eliminación es debida al proceso de coagulación.

El cesio también es eliminado de manera muy importante (95 %). Sin embargo, en este caso la citada descontaminación es debida en gran medida a la actuación de la arena, pero no atribuible a la retención de los coágulos sino que actúa por fijación del radionucleido. En este caso no parece existir una pérdida de eficiencia al incrementar el pH.

Sin embargo, el estroncio es eliminado en proporciones reducidas sin observarse una influencia del valor del pH.

A modo de resumen comparativo cabe considerar la siguiente figura:

Figura 34



2.1.1. Especiación de los fangos producidos en el tratamiento de aguas con radionucleidos artificiales

Los resultados obtenidos en la especiación realizada a los lodos producidos en la descontaminación radiactiva lograda durante la potabilización en la planta piloto del agua de Tarancón, a pH 7,5 y 9,5, para los radionucleidos ^{241}Am , ^{85}Sr y ^{137}Cs incorporados a la misma, se presentan en las figuras 35, 36 y 37 respectivamente. Antes de proceder a su análisis, ha de señalarse que se ha verificado que éstos resultados son perfectamente homologables con los obtenidos para las restantes aguas ensayadas a las que se les ha contaminado con los precitados radionucleidos.

Por lo que se refiere a los resultados de la especiación química del americio, puede claramente deducirse que este elemento está fuertemente asociado al fango, ya que, como se puede observar en la figura 35, la mayor parte del americio se encuentra en la fracción residual 6. Sin embargo, un porcentaje bastante importante de dicho elemento tiene tendencia a asociarse a los carbonatos, que se forman con mayor facilidad para el pH 9,5 que a pH 8.

Para el caso del ^{137}Cs , que es difícil de eliminar de su estado en disolución mediante los procesos de coagulación-floculación, independientemente del valor del pH al que se trabaje, se puede observar en la figura 36 que este elemento está prácticamente equidistribuido en todas las fracciones del fango que han sido consideradas en el estudio de especiación realizado.

Por lo que respecta al ^{85}Sr , los resultados de las distintas fracciones obtenidas en el análisis de la especiación química de los lodos generados, a los pH 8 y 9,5, se muestran en la figura 37. Como se puede apreciar, para ambos valores del pH, el estroncio se encuentra en la fracción reducible 4, siendo los porcentajes presentes en las demás fracciones consideradas, comparativamente muy bajos. Este resultado es coherente con el obtenido para la especiación del radio en sus correspondientes fangos, pudiéndose concluir que ambos elementos, debido a su análogo comportamiento químico, están retenidos en el fango bajo formas también muy similares.

Figura 35. Especiación química, a pH 8 y pH 9,5, del fango generado durante la potabilización del agua de Tarancón para el radionucleido ^{241}Am

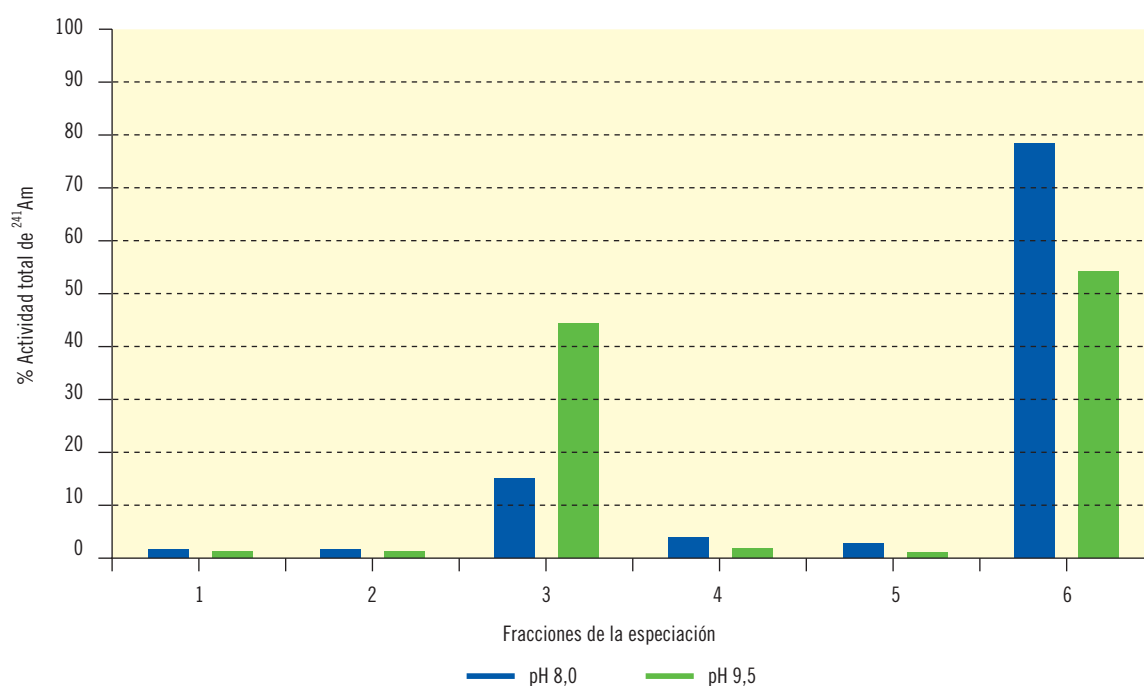


Figura 36. Especiación química, a pH 8 y pH 9,5, del fango generado durante la potabilización del agua de Tarancón para el radionucleido ^{137}Cs

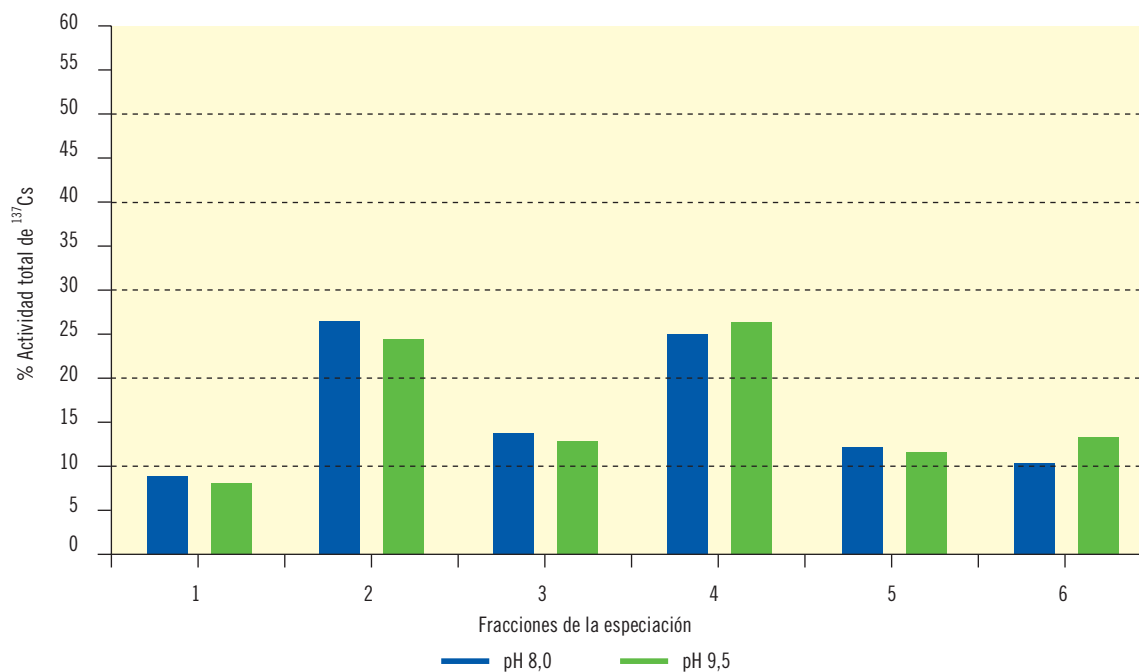
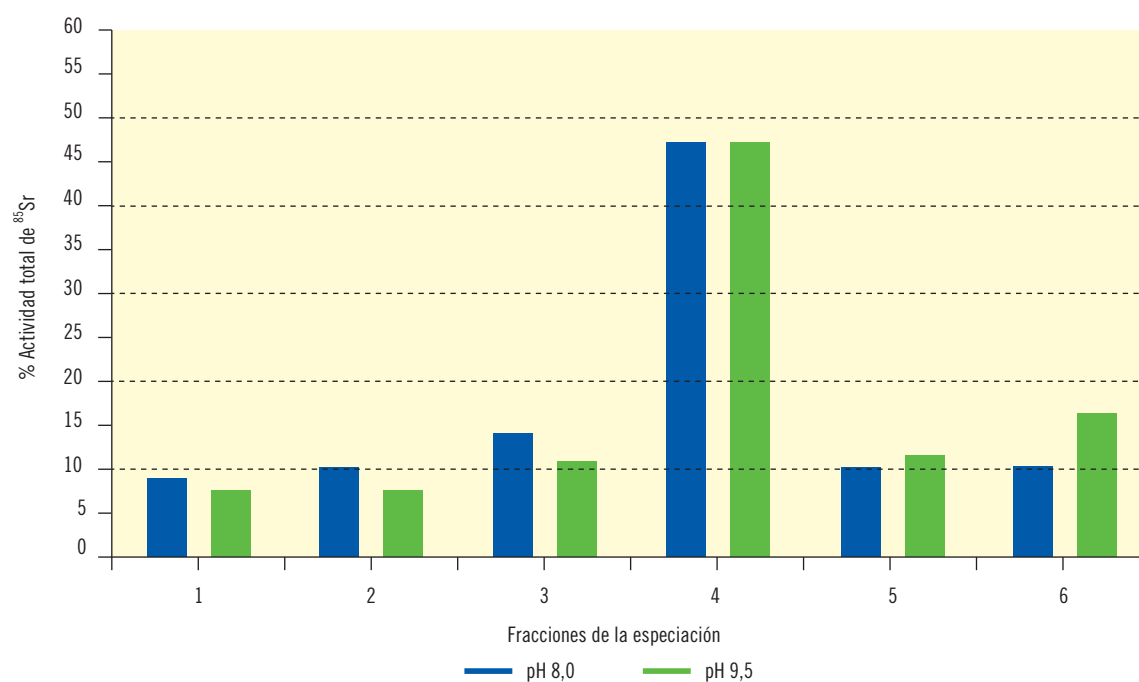


Figura 37. Especiación química, a pH 8 y pH 9,5, del fango generado durante la potabilización del agua de Tarancón para el radionucleido ^{85}Sr



Las principales conclusiones que pueden extraerse del estudio efectuado, y cuyas principales etapas de planificación de objetivos, desarrollo experimental y resultados obtenidos, se han presentado resumidamente en la presente monografía, son las siguientes:

- Es posible garantizar la eliminación de un porcentaje muy importante del uranio y radio existente disuelto en las aguas, produciendo una reducción media de la dosis incorporada por ingesta del 90%, al aplicarles un adecuado tratamiento de potabilización, calificable de estándar, no agresivo y que permite obtener unas aguas que además son química y organolépticamente potables.
- Las mejores descontaminaciones radiactivas para el uranio se producen a pH 6, mientras que para favorecer la eliminación del radio, el rango de valores óptimo del pH para conseguir las mejores eficiencias de eliminación, es de 9,5 a 10.
- Las diferencias cuantitativas en el grado de eliminación conseguido para el uranio y el radio en las distintas aguas analizadas, debe unívocamente asociarse a sus distintas características físico químicas.
- Se pueden predecir, e incluso mejorar las eficiencias de descontaminación, que pueden obtenerse durante la etapa de coagulación-floculación del tratamiento de potabilización de las aguas, para los diferentes radionucleidos naturales estudiados, modificando convenientemente el valor de la concentración de bicarbonatos que de forma natural presentan las aguas así tratadas.
- Como se ha demostrado a partir de los resultados obtenidos, las experiencias llevadas a cabo en una planta potabilizadora a escala, al compararlos con los producidos en los ensayos de tipo *jar-test* efectuados en el laboratorio, el tratamiento de potabilización del agua en una planta real, debe beneficiar el grado de descontaminación radiactiva logrado en el presente estudio, tanto para el uranio como para el radio.
- Por lo que respecta a la arena, ésta contribuye positivamente en la eliminación del radio presente en algunas aguas.
- El uso de zeolitas resulta muy efectivo, cuando se incorporan a los lechos filtrantes, por lo que respecta al nivel de descontaminación del radio existente en las aguas, consiguiéndose en tales casos eficiencias próximas al 100%.
- Los estudios de especiación química del fango producido durante las experiencias de potabilización diseñadas para eliminar el contenido radiactivo existente en las aguas ensayadas, permiten afirmar que el uranio se encuentra, para los dos pHs estudiados, en las fracciones identificadas como carbonatada y reducible, mientras que el radio se encuentra casi exclusivamente en la fracción reducible. Estos resultados permiten diseñar el procedimiento menos agresivo con el que eliminar muy eficientemente el contenido radiactivo transferido a los fangos para el uranio y el radio, con porcentajes de actividades remanentes menores que el 2%, para su posterior concentración y gestión.
- Sin embargo, no se puede garantizar, que con los procedimientos desarrollados para la descontaminación radiactiva natural de las aguas durante su potabilización, se minimice la dosis ingerida para la totalidad de los radionucleidos existentes en la serie del uranio, ya que, a modo de ejemplo, se desconoce el grado de eliminación que se produce para otros radionucleidos de la citada cadena radiactiva diferentes de los aquí investigados, en particular para el ^{210}Po .
- Otro de los aspectos del presente estudio que requieren un ulterior desarrollo está asociado a sus premisas de planteamiento y es que para las características de algunas de las poblaciones afectadas por aguas con significativos contenidos radiactivos naturales, es dudoso que sean fácilmente aplicables las soluciones aquí propuestas, debido a que por su pequeño tamaño, con frecuencia no es económicamente viable instalar y mantener una planta potabilizadora para aplicar en ella el procedimiento de potabilización aquí propuesto.

- Por lo que a los radionucleidos artificiales aquí ensayados se refiere, puede concluirse en primer lugar que no parece existir una correlación evidente entre la descontaminación alcanzable a la salida del decantador y las características químicas del agua.
- La descontaminación alcanzable para el americio se encuentra en el entorno del 95% y es prácticamente insensible al coagulante empleado, si bien se observa una ligera mejor descontaminación asociada al uso de coagulantes con base hierro.
- En el caso del cesio puede decirse que la descontaminación conseguida se ha situado en el entorno de 70%, siendo más eficientes los coagulantes con base hierro, frente a aquellos fabricados en base aluminio, dentro de los reducidos valores que se obtienen en la descontaminación del precipitado catión durante el proceso de coagulación.
- En relación con la descontaminación de estroncio los valores obtenibles son muy reducidos, se encuentran en el entorno del 20%, pero se observa una mejora sustancial, que puede llegar al 80%, cuando existe un aporte externo de carbonatos y el proceso tiene lugar con un pH elevado, mayor que 9,5.
- En los ensayos antes descritos se ha observado un mejor comportamiento de los coagulantes con base hierro que aquellos con base aluminio.

La experiencia realizada con agua de Agoncillo ha confirmado este extremo, lo que podría ser causa de una recomendación de empleo de coagulantes con base hierro en aquellos lugares en los que pueda existir una presencia de radionucleidos artificiales en el agua.

- Se ha observado un excelente comportamiento del filtro empleado en la eliminación de radionucleidos artificiales aquí considerados. Éste está constituido por arena procedente de areniscas con un contenido de 9-12% de feldespatos.

Una investigación orientada a determinar las características de tal arena ha puesto de manifiesto que posee una capacidad de cambio de 3,12 mEq/100g. Esto, aplicado a los radionucleidos de interés en el tema objeto de estudio como ^{137}Cs o ^{90}Sr , podría suponer una retención de unos 3 MBq de ^{137}Cs o 42 MBq de ^{90}Sr por gramo de arena.

Durante el ensayo en la planta piloto, este comportamiento ha sido solamente observado para el cesio, no así para el estroncio, posiblemente debido a procesos de competencia con el calcio y magnesio contenidos en el agua.

Adicionalmente se ha observado que la retención en este tipo de arena es reversible, de modo que el filtro puede ser limpiado mediante un lavado apropiado en contracorriente.

- En relación con la zeolita se constató que, al nivel en que se utilizó, su eficiencia es muy reducida. No obstante, y tal como se comprobó en los ensayos efectuados sobre radionucleidos naturales, podría incrementarse notablemente esta efectividad si fueran empleadas en forma de filtros multicapa.
- En el ensayo realizado sobre agua de Alicante, donde se empleó un carbonato como corrector de pH y se operó a valores elevados de pH (9,5-10), se observó una elevada descontaminación de estroncio que alcanzó hasta el 80%.
- Los estudios de especiación química del fango producido durante las experiencias de potabilización diseñadas para eliminar el contenido radiactivo artificial existente en las aguas ensayadas, permiten afirmar que el americio se encuentra, para los dos pHs estudiados, predominantemente en la fracción identificada como residual y en menor proporción en la fracción carbonatada, mientras que el cesio se encuentra prácticamente equidistribuido entre las diferentes fracciones y el estroncio casi exclusivamente en la fracción reducible.

ÍNDICE DE CONTENIDOS

RESUMEN	5
SUMARIO	7
1. INTRODUCCIÓN	9
2. ANTECEDENTES	13
3. OBJETIVOS.....	17
4. ESCENARIO.....	21
1. Selección de las aguas a estudiar	22
2. Aguas con radionucleidos de origen natural.....	22
2.1. Programa de muestreo.....	22
2.2. Aguas seleccionadas para estudio.....	24
3. Aguas con radionucleidos de origen artificial.....	26
5. METODOLOGÍA.....	29
1. Experiencias de coagulación-floculación o de <i>jar-test</i>	30
1.1. Pretratamiento	32
1.2. Clarificación	32
1.3. Postcloración	33
2. Experiencias en la planta piloto	34
2.1. Estructura	34
2.2. Operación	36
2.3. Condiciones operativas en los diferentes casos estudiados	37
3. Fangos, arenas y arcillas	41
3.1. Retención de radionucleidos en los fangos	41
3.2. Retención de radionucleidos por el filtro de arena.....	43
3.3. Retención y elución de Cs y Sr por arenas y zeolitas	43
6. RESULTADOS.....	49
1. Radionucleidos naturales.....	50
1.1. Ensayos realizados en el laboratorio	50
1.1.1. Tendencias extraídas de los ensayos de coagulación floculación	50

1.2. Ensayos realizados en la planta piloto	52
1.3. Especiación de los fangos producidos en el tratamiento de aguas con radionucleidos naturales	54
2. Radionucleidos artificiales.	54
2.1. Ensayos realizados en la planta piloto	54
2.1.1. Especiación de los fangos producidos en el tratamiento de aguas con radionucleidos artificiales . .	61
7. CONCLUSIONES	63

Potabilización radiológica del agua de consumo humano

Colección Informes Técnicos
18. 2007

