

Facultad de Ciencias

**Caracterización del coeficiente de
difusión de radón de membranas
impermeables mediante el método de
medida de la concentración por una
cara**

(Characterisation of the radon diffusion coefficient of
impermeable membranes using the one-sided
concentration measurement method)

Trabajo de Fin de Grado
para acceder al

GRADO EN FÍSICA

Autor: Carlos Ayllón González

Director: Daniel Rábago Gómez

Fecha: 11 Julio 2024

Quisiera expresar mi agradecimiento a los que me han apoyado en este proceso hasta llegar aquí, especialmente a familia y amigos que han servido de apoyo y ánimo en los momentos de agobio.

También, mostrar mi agradecimiento a Daniel, por el tiempo y empeño empleado durante estos meses, por la paciencia en el desarrollo del trabajo y su involucración continua a pesar de que, en algunos momentos el desarrollo del experimento no acompañaba al esfuerzo dedicado, además del resto de compañeros del departamento.

Por último, mencionar a Radim, quién en los momentos finales con su aportación nos permitió continuar con el desarrollo del experimento.

A todos los que han participado de un modo u otro en el desarrollo de este trabajo, muchas gracias.

Resumen

El radón es un gas radiactivo que se genera partir del decaimiento del radio presente en el suelo, rocas y agua. La exposición prolongada al radón puede representar un riesgo para la salud humana, ya que se ha relacionado con un mayor riesgo de cáncer de pulmón, especialmente en ambientes cerrados con una acumulación significativa de radón. Una de las soluciones constructivas recogidas en el Código Técnico de la Edificación es la implementación de una barrera de protección entre el terreno y la vivienda. La aptitud de estas barreras viene determinada por el coeficiente de difusión al radón.

El objetivo de este trabajo es implementar el método de determinación del coeficiente de difusión de radón por una cara en membranas impermeables descrito en el estándar ISO 11665-12:2018. Se ha realizado un estudio en profundidad del estándar mencionado y de la bibliografía disponible sobre la aplicación de este y de otros métodos similares. Se ha diseñado el dispositivo experimental, se ha elaborado un modelo que relaciona los datos experimentales con los esperados teóricamente para obtener el coeficiente de difusión. Se ha determinado el rango de aplicación del método y se ha evaluado mediante la medida del coeficiente de radón en varias láminas comerciales intentando abarcar todo el rango de aplicación.

Palabras clave: Radón; disfusión; membrana; radiactividad



Abstract

Radon is a radioactive gas that is generated from the decay of radium present in soil, rocks and water. Long-term exposure to radon may be a risk to human health, as it has been linked to an increased risk of lung cancer, especially in indoor environments with significant radon accumulation. One of the construction solutions included in the Technical Building Code is the implementation of a protective barrier between the land and the home. The suitability of these barriers is determined by the radon diffusion coefficient.

The objective of this work is to implement the method for determining the radon diffusion coefficient on one side in impermeable membranes described in the ISO 11665-12:2018 standard. An in-depth study of the aforementioned standard and the available bibliography on the application of this and other similar methods has been carried out. The experimental device has been designed, a model has been developed that relates the experimental data with those expected theoretically to obtain the diffusion coefficient. The range of application of the method has been determined and has been evaluated by measuring the radon coefficient in several commercial films, trying to cover the entire range of application.

Keywords: Radon; diffusion; membrane; radioactivity

Índice

1	Introducción	1
2	Radiactividad	2
2.1	Radiactividad en la naturaleza	3
2.2	Tipos de desintegraciones radiactivas	3
2.3	Ley de la desintegración radiactiva	5
3	El radón	6
3.1	El radón	6
3.2	Cadenas radiactivas y su isótopos	6
3.3	Problemática con el radón	7
3.4	Fuentes de radón	8
3.4.1	Terreno	8
3.4.2	Aguas subterráneas	10
3.4.3	Materiales de construcción	10
3.5	Transporte de radón	10
3.6	Marco legislativo	11
4	Método experimental	15
4.1	Método desarrollado en la ISO/TS 11665-12:2018	15
4.2	Métodos para la medir el coeficiente de difusión	20
4.2.1	Medida de la concentración por ambas caras	20
4.2.2	Medida de la concentración por una cara	21
4.3	Factores influyentes en el procedimiento	22
5	Dispositivo experimental	24
5.1	Fuente de radón	24
5.2	Detectores de radón: Radon scout	26
5.3	Cámara	27
5.4	Consecución de datos	28

5.5	Membranas ensayadas	30
6	Validación del modelo	33
6.1	Pseudocódigo	33
6.2	Reproducción de curvas teoricas	34
6.3	Validación del método iterativo	35
7	Análisis y resultados	37
7.1	Datos de las membranas	37
7.2	Límites de detección	37
7.3	Baja concentración	38
7.4	Alta concentración	41
7.5	Comparación de resultados	44
8	Conclusiones	47
	Referencias	49

1

Introducción

El radón (^{222}Rn) es un gas radiactivo de origen natural, producto de la desintegración del radio (^{226}Ra) a partir de la cadena radiactiva del uranio (^{238}U) presente en suelos y rocas. Si bien es incoloro, inodoro e insípido, su presencia en los interiores de edificios puede representar un riesgo significativo para la salud pública. El radón es un elemento radiactivo que se encuentra en el grupo de los gases nobles, su carácter gaseoso le permite moverse a través del suelo y rocas pudiendo desplazarse hasta la atmósfera y filtrarse en los edificios a través de grietas en los cimientos y otras aberturas.

El principal riesgo del radón radica en su capacidad para emitir partículas alfa durante su proceso de desintegración. Al inhalarlo, sus descendientes radiactivos pueden dañar el tejido pulmonar. La Organización Mundial de la Salud (OMS) y otras entidades de salud pública han establecido una correlación entre el radón y el cáncer de pulmón, derivando en la consideración de la presencia de este gas como un factor de riesgo para la salud pública [1].

Debido a los riesgos asociados al radón, diversas normativas y directrices han sido establecidas para controlar su concentración en el aire en el interior de las diferentes edificaciones. La Unión Europea ha implementado normas básicas de seguridad para la protección contra los peligros derivados de la exposición a radiaciones ionizantes, incluyendo el radón, recomendando un nivel de referencia para la concentración de este en interiores, instando a los Estados miembros a implementar medidas correctivas si se superan estos niveles [2].

Una de las estrategias propuestas para prevenir la infiltración de radón en los edificios es el uso barreras de contención. Estas actúan como barreras físicas que impiden el paso del gas desde el suelo hacia el interior de las edificaciones. Se pueden instalar durante la construcción de nuevos edificios o aplicarse en renovaciones y rehabilitaciones [3].

El objetivo de este trabajo es caracterizar una serie de membranas impermeables al radón determinando su coeficiente de difusión mediante el método de medida de la concentración por una cara. Se desarrollará un programa de análisis con el que evaluar la difusión del radón a través de las membranas estudiadas en función de su espesor d y su coeficiente de difusión.

Posteriormente se compararán los resultados con el método de medida de la concentración por dos caras implementado en el Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Cantabria (LaRUC) para después, poder comprobar si la implementación de este método, que permite realizar mediciones en períodos de tiempo inferiores, ofrece resultados satisfactorios en la evaluación de las membranas.

2

Radiactividad

La radiación es la emisión y propagación de energía a través del espacio o un medio material en forma de ondas electromagnéticas o partículas subatómicas. Dentro de la radiación, se encuentran las radiaciones ionizantes, aquellas en las que, al interactuar con la materia, la ionizan, es decir, tiene suficiente energía para arrancar electrones de los átomos y moléculas alterando sus propiedades.

La exposición a radiaciones ionizantes es un fenómeno al que cualquier individuo está expuesto, y dentro de esto se pueden clasificar según su origen. Por un lado, las radiaciones ionizantes naturales provienen tanto de los materiales y sustancias naturales radiactivas de la corteza terrestre, como de rayos cósmicos. Por otro lado, las radiaciones ionizantes artificiales son originadas por la actividad humana, ya sea de trabajos nucleares o exámenes y terapias médicas.

La radiación ionizante natural supone alrededor del 80% de la radiación a la que se está expuesto, ver figura 2.1, mientras que el resto es de origen artificial [4]. Además, aproximadamente la mitad de la natural es debida a la inhalación de gas radón y descendientes. Este elemento será el principal protagonista en este estudio.

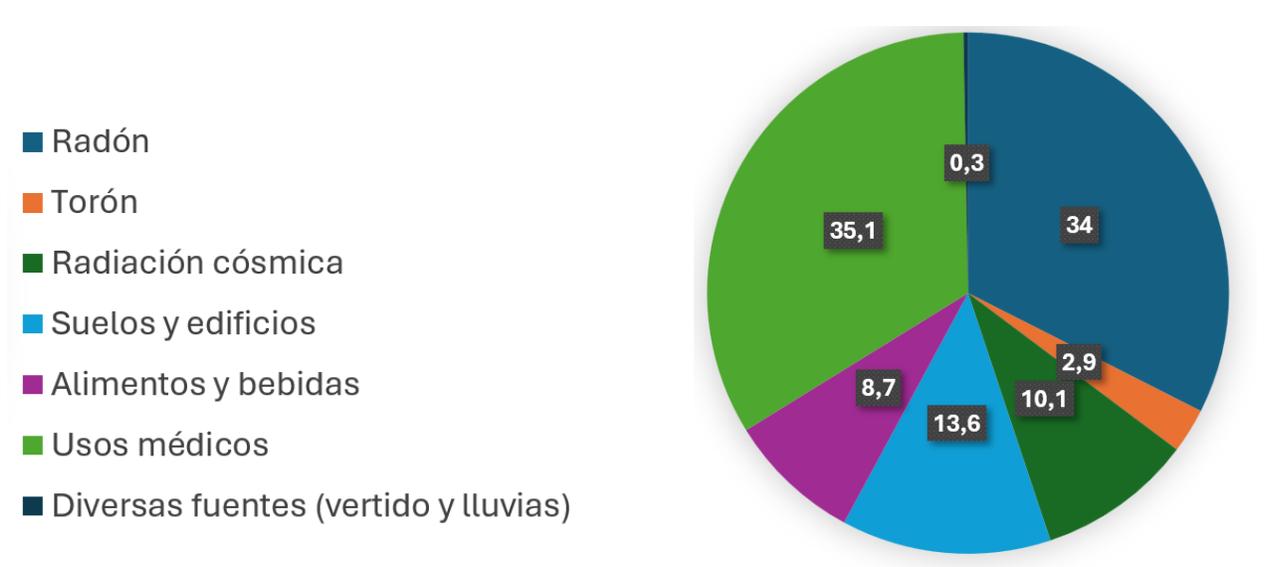


Figura 2.1: Contribuciones de las fuentes de radiaciones ionizantes de origen natural y artificial a la dosis promedio que recibe la población. [5]

De acuerdo con el Comité de las Naciones Unidas sobre los efectos de las radiaciones atómicas (UNSCEAR) y el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), la dosis media recibida por un miembro del público, a causa de todas las fuentes de radiación es de aproximadamente 3 miliSieverts al año [5]. Sin embargo, las dosis pueden, variar por diversas circunstancias, desde la localización al consumo de ciertos alimentos; en la figura 2.1 se detalla gráficamente un esquema de la distribución de la exposición a radiaciones ionizantes y sus respectivas contribuciones.

2.1. Radiactividad en la naturaleza

La radiactividad es un fenómeno natural de notable relevancia científica y medioambiental. Este es un proceso intrínseco en la naturaleza que se manifiesta en diversos contextos, materiales y elementos. Este hecho se debe a la inestabilidad de ciertos núcleos atómicos, los cuales, buscando alcanzar un estado más estable, emiten energía en forma de radiación. El estudio de la radiactividad y su incidencia en el entorno natural es útil para evaluar sus impactos y gestionar los riesgos asociados de manera efectiva.

La radiactividad natural se debe principalmente a la presencia de isótopos de algunos elementos radiactivos como el uranio (^{238}U), el uranio (^{235}U) o el torio (^{232}Th) que se encuentran dispersos en la corteza terrestre. Estos elementos sufren desintegraciones radiactivas, liberando partículas alfa, beta y radiación gamma, que pueden llegar a interactuar con el medio ambiente dando lugar a diferentes procesos.

Por otro lado, estos mismos elementos siguen sus propias cadenas de desintegración generando una serie de productos de descomposición que también pueden ser radiactivos. Un ejemplo significativo es el radón, un gas noble radiactivo que se produce durante la descomposición del uranio y el torio. El radón es particularmente detectable debido a su capacidad de filtrarse y pasar a través de los poros del suelo y las rocas, llegando eventualmente a acumularse en espacios cerrados como pueden ser viviendas y edificios.

Además, la radiactividad natural no se limita a la corteza terrestre. Las aguas subterráneas, los océanos y la atmósfera también contienen cantidades diversas de isótopos radiactivos. Por ejemplo, el ^{14}C , que se forma en la atmósfera superior por la interacción de los rayos cósmicos con el nitrógeno, es útil para procesos de datación de materia orgánica que resulta útil en excavaciones y otros procesos geológicos y arqueológicos.

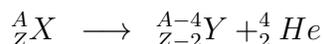
2.2. Tipos de desintegraciones radiactivas

Todo núcleo atómico tiene su número de neutrones y protones característico, que lo identifica y diferencia del resto. Los núcleos están compuestos de protones y neutrones, de modo que cada elemento tiene asociado un número atómico Z (número de protones) y un número másico A (suma de protones, Z y neutrones, N) [6].

Como se ha hablado anteriormente, algunos núcleos atómicos son inestables, es decir, la combinación de los nucleones que lo conforman llevan a una configuración no estable que tiende a desembocar en procesos radiactivos emitiendo partículas y liberando energía para lograr estabilidad. En elementos cuyo número atómico es pequeño, la condición de estabilidad se tiene bajo la condición de $Z = N$, no obstante, para elementos más pesados, con un Z mayor, las repulsiones electrostáticas son mayores y la estabilidad deja de cumplirse bajo esa condición siendo necesario un mayor número de neutrones.

Según la naturaleza del decaimiento de los núcleos atómicos inestables y las partículas que producidas debido a las pérdidas de energía, las desintegraciones observadas se pueden clasificar en tres grupos.

Desintegración alfa: La responsable de mantener unidas las partículas que conforman los núcleos es la fuerza fuerte, sin embargo, las desintegraciones alfa se deben a efectos de repulsión coulombiana. Estos efectos aumentan en relevancia conforme los átomos son más pesados, pues aumenta con el tamaño del núcleo con una dependencia de $Z(Z - 1) \approx Z^2$ mientras que la fuerza fuerte tiene una dependencia directa con el número másico A [6]. Este tipo de emisión consiste en la emisión de partículas alfa, y viene caracterizada por la siguiente expresión:



Siendo X e Y los núcleos padre e hijo y el núcleo de helio la propia partícula alfa. Este tipo de partículas poseen una alta LET, es decir, la transferencia lineal de energía, que es la cantidad de energía media que la radiación imparte al medio por unidad de longitud, es muy elevada, esto es que pierden mucha energía por unidad de espacio recorrido.

Desintegración beta: Esta puede ser de dos tipos, positiva o negativa según si se emite un positrón, e^+ , o un electrón e^- respectivamente [6]. La primera consiste en el decaimiento de un protón en un neutrón emitiendo un positrón, y un neutrino.



En el segundo proceso, un neutrón se transforma en un protón emitiendo un electrón además de un antineutrino.



Al haber una variación del número de protones, esto implica un cambio en el número atómico en ± 1 según el proceso, pero en ningún momento cambia A .

Desintegración gamma: A diferencia de los dos casos anteriores no hay cambio ni el número atómico ni el másico [6]. En este tipo de desintegraciones los núcleos radiactivos pasan de un estado excitado a uno de menor energía emitiendo radiación electromagnética en forma de partículas gamma o fotones cuya energía se encuentra en el rango de los keV. Cada elemento posee su propio espectro de emisión electromagnética cuyas intensidades y energías son propias.

2.3. Ley de la desintegración radiactiva

En base a todo lo anterior, cuando un núcleo padre sufre un proceso de decaimiento da lugar a un núcleo hijo además de unos productos de decaimiento. Este proceso es espontáneo, por lo que no es posible, de manera aislada, determinar cuándo un núcleo atómico decaerá en otro. Si por el contrario, se tiene un gran conjunto de núcleos radiactivos, este proceso sigue una tendencia exponencial regida por la Ley de desintegración radiactiva cuya expresión es la siguiente [6]:

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (2.3)$$

Donde λ es la constante de desintegración, que es propia de cada elemento, y se refiere a la probabilidad de que un núcleo se desintegre por unidad de tiempo, t es el tiempo y N_0 el número de átomos presentes en el tiempo $t=0$. Relacionado con la constante de desintegración está la vida media del elemento radiactivo, τ , que estima el tiempo que tardaría en desaparecer los átomos de la muestra.

$$\tau = \frac{1}{\lambda} \quad (2.4)$$

Otra magnitud de uso más frecuente es el período de semidesintegración, esto es, el tiempo que tarda la muestra inicial en reducirse a la mitad $N_0/2$:

$$T_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad (2.5)$$

En el caso del elemento de interés para este proyecto, el tiempo de vida media del radón es de 3.82 días. Por último, otra magnitud de gran relevancia es la actividad, o rapidez de desintegración, que se define como tasa de variación del número de núcleos radiactivos por unidad de tiempo:

$$A = -\frac{dN}{dt} \quad (2.6)$$

De acuerdo a la ecuación 2.3, la actividad de una muestra radiactiva es:

$$A(t) = -(-\lambda N_0) e^{-\lambda t} = A_0 e^{-\lambda t} = \lambda N(t) \quad (2.7)$$

La unidad en el sistema internacional es el Becquerelio (Bq), o lo que es lo mismo, una desintegración por segundo

3

El radón

3.1. El radón

El radón es un gas radiactivo, perteneciente a la familia de los gases nobles. Este grupo posee una serie de propiedades muy similares, se trata de gases monoatómicos inodoros, incoloros y presentan una reactividad química muy baja. Esta baja reactividad se explica en base a su configuración electrónica de orbitales internos que se encuentran íntegramente ocupados, lo que proporciona a este tipo de elementos de una gran estabilidad.

El radón proviene de tres series radiactivas naturales en función del isótopo radiactivo que la comience; estos son el ^{238}U , el ^{232}Th y el ^{235}U , estas cadenas radiactivas finalizan en isótopos estables del plomo tras una serie de procesos de emisión y desintegración.

3.2. Cadenas radiactivas y su isótopos

De estas tres cadenas resultan tres isótopos intermedios de radón, el ^{219}Rn o actinión, pues proviene del actinio, es el correspondiente a la cadena del ^{235}U y su período de semidesintegración es de 3.96 s. El ^{220}Rn o torón, pues pertenece a la serie del ^{232}Th cuyo período de semidesintegración es 55.6 s. Y, por último, el ^{222}Rn , denominado habitualmente como radón de la cadena del ^{238}U con un período de semidesintegración de 3.82 días. De todos ellos, el más destacado desde el punto de vista ambiental y de salud es el ^{222}Rn , que es proveniente de la desintegración del ^{226}Ra , principalmente porque su período de semidesintegración es el mayor, y será con el que se trabaje de aquí en adelante.

La serie del ^{238}U [7], culmina en la formación de plomo-206, un elemento estable. En esta serie, el uranio-238 se desintegra sucesivamente en torio-234, protactinio-234, uranio-234, torio-230, radio-226 y finalmente en radón-222.

El proceso de desintegración radiactiva del radón-222 continúa con una serie de productos de desintegración que también son radiactivos [7], conocidos como descendientes del radón o productos de decaimiento. El radón-222 se desintegra mediante la emisión de una partícula alfa para formar polonio-218, que a su vez se desintegra en plomo-214, pasando luego a bismuto-214, polonio-214, y finalmente a plomo-210, que después de varias desintegraciones más, culmina en plomo-206 estable. Estas desintegraciones sucesivas emiten partículas alfa y beta, así como radiación gamma, tal y como se observa en la figura 3.1.

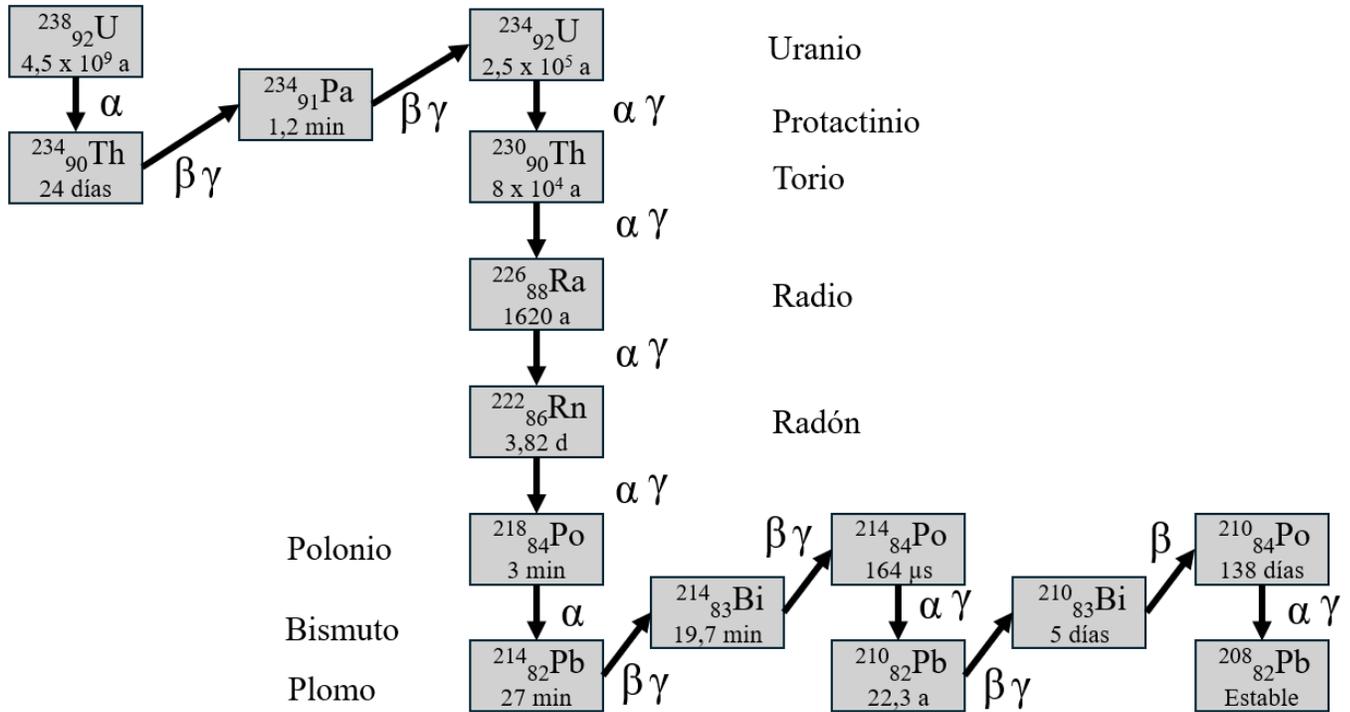


Figura 3.1: Esquema de la cadena radiactiva del ^{232}Th para la formación de ^{222}Rn y sus descendientes.

3.3. Problemática con el radón

La capacidad del radón de movilizarse en el entorno se debe a su naturaleza gaseosa. El radón puede escapar fácilmente de los minerales y rocas donde se forma y difundir a través del suelo y la atmósfera. Esta movilidad permite que el radón se acumule en niveles elevados en espacios cerrados, como sótanos, casas y edificios, donde la ventilación es insuficiente para dispersar el gas.

La principal vía de exposición al radón es la inhalación de aire contaminado en interiores. Debido a su carácter gaseoso y a su periodo de semidesintegración grande comparado con el tiempo de permanencia en los pulmones, el radón no constituye la principal fuente de exposición en los pulmones. Los descendientes sólidos del radón, principalmente ^{218}Po y ^{216}Po , emisores alfa, que se encuentran en el aire conforman la mayor fuente de exposición a la radiación al depositarse en las vías respiratorias y los pulmones. Inicialmente si la fuente es externa, esto no supone un riesgo pues las partículas alfa son frenadas por la piel, pero, los descendientes al adherirse a las vías respiratorias se convierten en fuentes de radiación que pueden llegar a provocar lesiones y mutaciones genéticas y, eventualmente, al desarrollo de cáncer de pulmón.

Además, organismos como la Organización Mundial de la Salud (OMS) han publicado estudios que sitúan al radón como la segunda causa principal de cáncer de pulmón después del

tabaquismo. Se estima que entre el 3% y el 14% de los casos de cáncer de pulmón a nivel mundial pueden atribuirse a la exposición al radón [1].

De todo lo anterior se tiene que, la acumulación de radón en interiores es una preocupación importante porque la inhalación del mismo y sus productos de decaimiento resultan perjudiciales para la población [8].

Las técnicas que permiten evaluar los niveles de radón en viviendas y otras estructuras, así como en el suelo y el agua además de la implementación de medidas de mitigación, son necesarias para reducir el impacto de este elemento en la salud pública. Algunos ejemplos pueden ser, la mejora de la ventilación o evitar la entrada del mismo, pudiendo llegar a reducir significativamente las concentraciones de radón en interiores y, por lo tanto, disminuir el tiempo de exposición y con ello, el riesgo asociado a la misma.

3.4. Fuentes de radón

El radón emana del suelo pasando al aire libre donde se desintegra y produce partículas radiactivas. Sin embargo, en el aire libre, el radón se diluye rápidamente, por lo que las concentraciones a las que está expuesta la población son muy bajas y no suelen resultar en un factor de riesgo. El problema surge en espacios cerrados, donde la concentración de este gas puede aumentar considerablemente. El radón en edificios puede proceder tanto de materiales de construcción, como el terreno en el que se encuentran además de aguas subterráneas entre otros [8], [9]. A continuación, se detallan las principales fuentes de las que proviene este gas.

3.4.1. Terreno

La fuente más común de radón es el suelo [9]. El radón puede penetrar a una vivienda por convección por medio grietas o partes que estén directamente en contacto con el propio suelo como aparcamientos o sótanos, y por difusión a través de los propios materiales de construcción.

La exhalación es la actividad que por unidad de tiempo y superficie pasa del terreno a la superficie, y en el proceso de difusión intervienen múltiples variables. La concentración de radón que se forma en el suelo es del orden de miles de veces superior a la presente en el aire, por ello tiene lugar la difusión del radón a través del suelo hasta llegar a la superficie.

Como el suelo es la principal fuente de radón, las plantas bajas de los edificios que están en contacto directo con el mismo, son las que presentan mayores concentraciones del gas, ver figura 3.2.

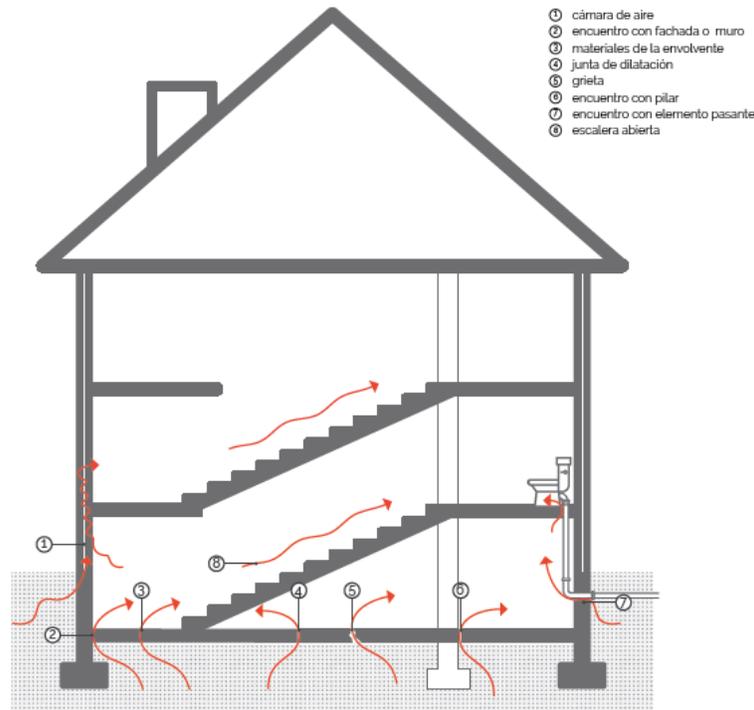


Figura 3.2: Principales vías de entrada del radón a un edificio. [9]

Las cantidades de radón que se acumulan en el interior de construcciones está relacionado con muchos factores, por ejemplo, aquellos suelos cuya composición geológica incluya un alto contenido de uranio, como pueden ser los compuestos por rocas ígneas como el granito. También, es importante la capacidad de movimiento del radón en el propio terreno. Tras la desintegración del radio, el radón no permanece estático en el lugar en el que se produce, pues al tratarse de un gas puede moverse, y su desplazamiento está influenciado por varios factores:

Actividad del suelo: La actividad del suelo como fuente dependerá de la presencia de ^{226}Ra y su concentración.

Humedad del terreno: Cuanto mayor sea el porcentaje de humedad mayor es la emanación de radón por parte del terreno hasta alcanzar un valor máximo, a partir de entonces la emanación vuelve a descender.

Permeabilidad al aire: La permeabilidad al aire del terreno indica la facilidad de movimiento que tiene el radón en el mismo; a menor permeabilidad mayor dificultad de movimiento y viceversa

De todo lo anterior se concluye que, el comportamiento del radón en el entorno está influenciado por varios factores geológicos y ambientales. La concentración de radón en el suelo y su difusión hacia la superficie dependen de la permeabilidad del suelo, la porosidad de las rocas entre otros factores que agilizan su movimiento. Además, las condiciones climáticas, como la presión atmosférica, la temperatura y la humedad, también afectan la liberación y

concentración de radón en el aire. Además, destacar que hábitos como la ventilación frecuente de espacios interiores, en general, disminuye los niveles de concentración de radón en las viviendas.

3.4.2. Aguas subterráneas

Las rocas que contienen uranio liberan radón al agua al entrar en contacto. Por lo general, en aguas superficiales la presencia de radón es prácticamente nula pues se disipa fácilmente al contacto con el aire y no constituyen una fuente de radón a su llegada a los distintos tipos de construcciones. Pero si se hace uso de aguas subterráneas como pueden ser pozos, acuíferos o manantiales sin que sean tratadas, unido a la concentración de radón del suelo, existe la posibilidad de que el radón contenido en el agua se libere al medio hasta llegar a registrar concentraciones de radón notables [7].

3.4.3. Materiales de construcción

Al igual que en el caso del terreno, el contenido en elementos radiactivos de los materiales utilizados para la construcción depende principalmente de su composición y la cantidad de uranio o torio presente en los mismos.

Si la ventilación no es adecuada pueden llegar a convertirse en una fuente considerable de radón. Sin embargo, la exhalación debida a los materiales de construcción presentes en edificios y viviendas es notablemente inferior a la del suelo, del orden de diez veces menos. Por otra parte, en general no se dan este tipo de situaciones, y sumado a lo previamente explicado, hace que habitualmente no se espere que estos niveles sean significativos [9].

3.5. Transporte de radón

El radón se libera de los materiales que contienen uranio y torio a través de un proceso conocido como exhalación. Este proceso describe la desorción del radón de los poros y grietas del suelo hasta el aire. La tasa de exhalación de un terreno depende de la porosidad del mismo, su contenido en humedad o la temperatura ambiente. Después, la emanación de radón se produce a través de los poros o grietas presentes tanto en suelos como en materiales de construcción, o incluso en el contacto del agua con las rocas. Con esto se pueden valorar dos vías de transporte [10]:

Difusión: Es el movimiento debido a los gradientes de concentración entre los diferentes gases del terreno y el aire; el movimiento es de zonas donde la concentración es mayor a zonas donde es más baja. Principalmente está determinado por el coeficiente de difusión D que se mide en m^2/s , y depende de la composición del medio y sus propiedades físicas.

Convección: Es el movimiento debido a los gradientes de presión entre el gas del suelo y el interior de los recintos, permitiendo al radón recorrer distancias significativas del orden de decenas de metros.

3.6. Marco legislativo

El Plan Nacional contra el Radón recoge los requisitos relativos al radón de la Directiva europea 2013/59/Euratom del Consejo, de 5 de diciembre de 2013 [2], que establece normas de seguridad para la protección contra los peligros resultantes de la exposición a radiaciones ionizantes.

En España, las disposiciones legales que definen el marco legislativo establecidos por la directiva EURATOM respecto a lo influyente a la exposición al radón son: el Real Decreto 732/2019, de 20 de diciembre [11], por el que se modifica el Código Técnico de la Edificación y el Real Decreto 1029/2022 [3], de 20 de diciembre, por el que se aprueba el Reglamento sobre protección de la salud contra los riesgos derivados de la exposición a las radiaciones ionizantes.

El Plan Nacional contra el Radón [12] se desarrolla bajo el marco normativo del Real Decreto 1029/2022, de 20 de diciembre, por el que se aprueba el Reglamento sobre protección de la salud contra los riesgos derivados de la exposición a las radiaciones ionizantes. Establece una serie de medidas y directrices destinadas a minimizar los riesgos asociados a estas radiaciones, con un enfoque particular en la exposición al radón, que constituye una de las principales fuentes de radiación ionizante a las que está expuesta la población. Esta nueva directiva se aplica a la exposición al radón en recintos cerrados, en general, sin excluir las viviendas; y deja libertad a los Estados miembros para establecer su nivel de referencia sin llegar a superar los 300 Bq/m³.

Este reglamento será aplicado a toda situación que resulte en un riesgo de exposición a radiaciones ionizantes que no pueda ser considerado despreciable en términos de protección radiológica con la finalidad de proteger la salud de la población y el medio.

Con respecto a la protección radiológica, el control de toda situación que suponga un período de exposición a radiaciones ionizantes se debe apoyar en diversos aspectos [11]:

- **Justificación:** Toda práctica debe justificarse asegurando un beneficio total acorde al perjuicio que pueda suponer la exposición a la radiación.
- **Optimización:** La protección radiológica se optimizará para mantener la magnitud de las dosis individuales, la probabilidad de exposición y el número de personas expuestas lo más bajos que sea razonablemente posible.
- **Limitación de dosis:** Dentro de cualquier situación de exposición, la suma de la dosis recibida por cualquier persona no excederá los límites establecidos.

Respecto a las situaciones de exposición, el Consejo de Seguridad Nuclear establecerá niveles de referencia anuales según la situación. Una de las medidas clave del reglamento es la fijación de un nivel de referencia para la concentración de radón en el aire interior. Este nivel se establece en 300 Bq/m³ de promedio anual. Las edificaciones, sea cual sea su ocupación, deben ser evaluadas para asegurar que no superen este nivel de referencia. Además, para la

exposición externa, es 1 mSv por año sumado a la exposición externa al aire libre.

Asimismo, el reglamento establece la obligación de tomar medidas correctivas en aquellos casos donde se detecten concentraciones de radón superiores al nivel de referencia de media anual. Las medidas correctivas pueden incluir desde la mejora de la ventilación, el sellado de grietas en los cimientos y la instalación de sistemas de mitigación de radón. Estas acciones están diseñadas para reducir la concentración de radón en el aire interior y, por ende, minimizar los riesgos para la salud de los ocupantes de los edificios. La reforma del Código Técnico de la Edificación incluye una nueva vía de actuación para la protección frente al gas radón en edificaciones.

Código Técnico de la Edificación: Las exigencias mínimas de calidad en lo referente al cumplimiento de los niveles de referencia se recogen en el Código Técnico de la Edificación. De acuerdo a la zona en la que se encuentre el municipio, para verificar el cumplimiento de los niveles de referencia se establecerán según que medidas. En la siguiente figura se muestra el mapa por densidad de población en España 3.3

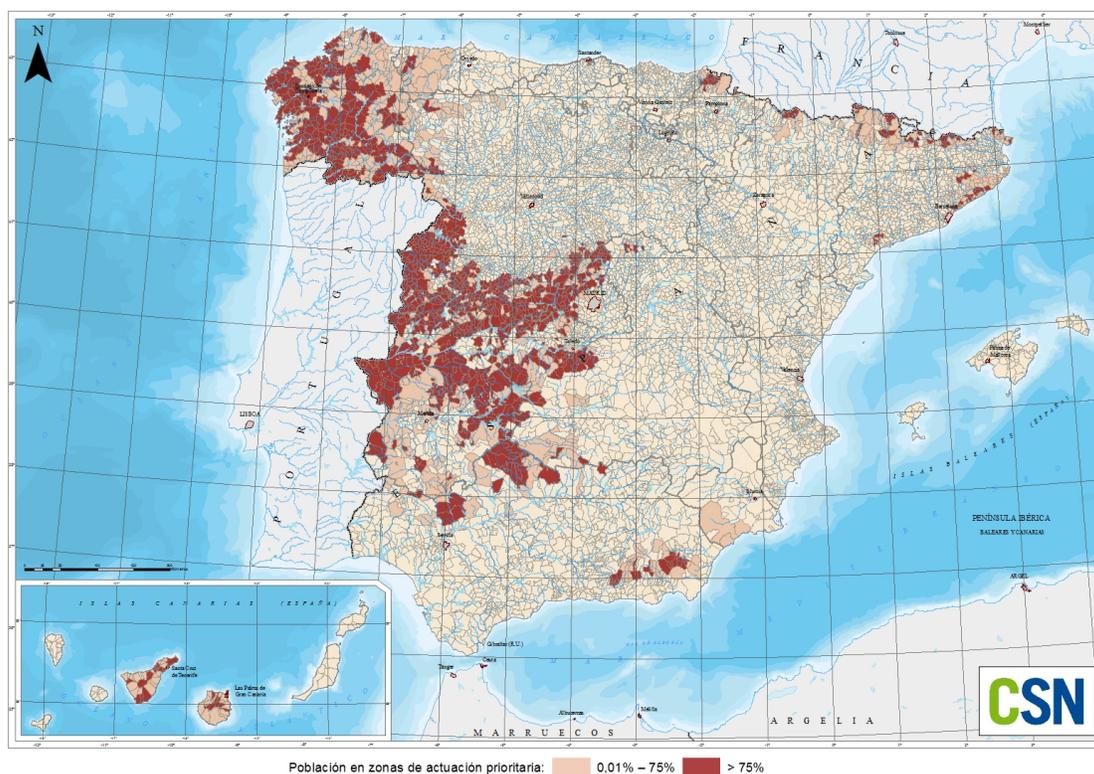


Figura 3.3: Mapa urbanístico por densidad de población. [13]

Clasificación de los municipios [14]:

- **Zona I:** Los que, sin pertenecer a zona II cumplen:

- Hasta un 5% de la zona urbana está en áreas cuya concentración potencial de radón supera los 300 Bq/m³.
 - Más de un 5% de la zona urbana está en áreas cuya concentración potencial de radón se encuentra en el rango entre 200-300 Bq/m³
- **Zona II:** Donde más de un 5% de la zona urbana está en áreas cuya concentración potencial de radón supera los 300 Bq/m³.

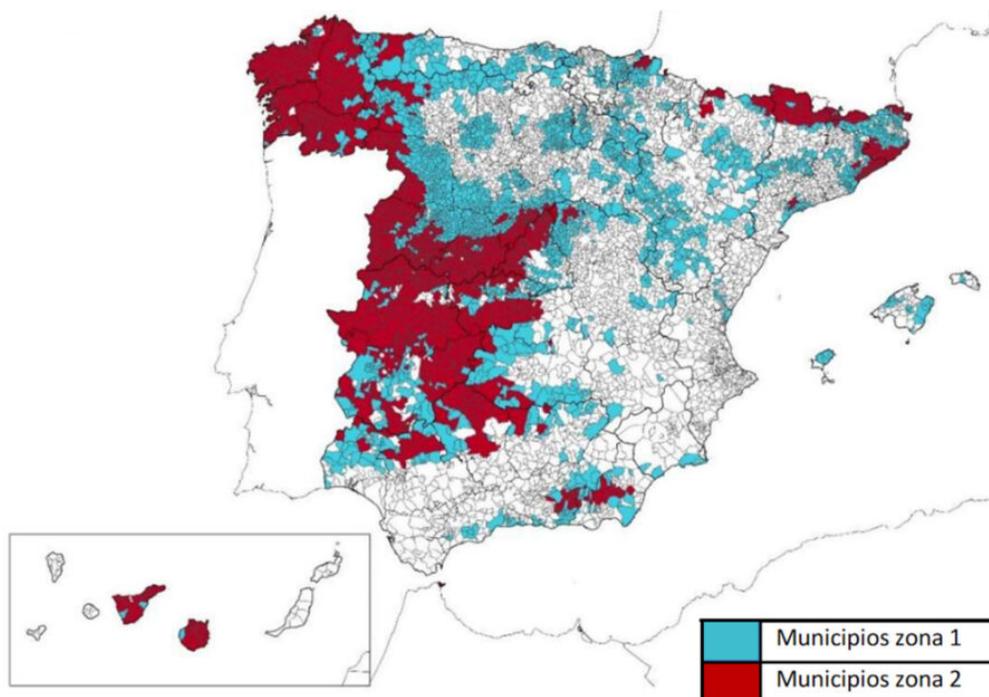


Figura 3.4: Mapa urbanístico por tejido urbano. [15]

Para aquellos municipios clasificados de de zona I, 3.4, se implmentan barreras de protección entre las zonas habitables y el terreno que restrinja el paso de gases que procedan del mismo. Se entiende por barrera de protección todo elemento que limite la circulación de los gases provenientes del terreno. Estas barreras seguirán las especificaciones dispuestas en el CTE. Una barrera tipo lámina o membrana se considerará apta si su coeficiente de difusión al radón es inferior a 10^{-11} m/s² con un espesaro de al menos 2 mm [3]. Si no es posible colocar una barrera con las características indicadas se pueden llevar a cabo el siguiente procedimiento.

La barrera deberá tener un espesor y un coeficiente de difusión tales que la exhalación de radón prevista a su paso sea inferior a la exhalación límite, cuya expresión en Bq/m²h es [3]:

$$E_{lim} = C_d \frac{Q}{A} \quad (3.1)$$

Siendo C_d la concentración de diseño (habitualmente el 10% del nivel de referencia; Q el caudal de ventilación del local a proteger en m³/h y A la superficie en m². La exhalación E debe ser $E < E_{lim}$, cuya expresión es la siguiente:

$$E = \frac{3 \cdot 10^5 \cdot \lambda l}{\sinh(d/l)} \quad (3.2)$$

Con $\lambda=7.56 \cdot 10^{-3} \text{h}^{-1}$ la constante de desintegración del radón, d el espesor de la barrera y l la longitud de difusión del radón en la barrera, que está directamente relacionada con el coeficiente de difusión al radón D :

$$l = \sqrt{\frac{D \cdot 3600}{\lambda}} \quad (3.3)$$

Por otro lado, aquellos municipios clasificados en zona II, 3.4, además de la barrera de protección se incluyen otros sistemas como espacios de ventilado o sistemas de despresurización [3].

4

Método experimental

4.1. Método desarrollado en la ISO/TS 11665-12:2018

El método de medida de la concentración por una cara se basa en medir la disminución de la concentración de actividad de radón con el tiempo, en el interior de una cámara donde una de las superficies está en contacto con la membrana muestra. Este método permite evaluar materiales impermeable al radón en períodos de medida considerablemente más pequeños.

Se coloca la muestra en uno de los extremos sellada con un material impermeable al radón, para después introducir una cierta cantidad de este gas en el interior de la cámara. Tras el llenado, la actividad comienza a disminuir por desintegración del radón, difusión del mismo a través de la membrana muestra hacia el aire o por fugas que pueda tener la cámara. Como se observa en la figura 4.1, el medio (1) se corresponde con el interior de la cámara, el medio (2) es la membrana donde la concentración de radón es dependiente de su espesor, y finalmente el medio (3) es el aire libre, donde la concentración de radón puede considerarse ínfima.

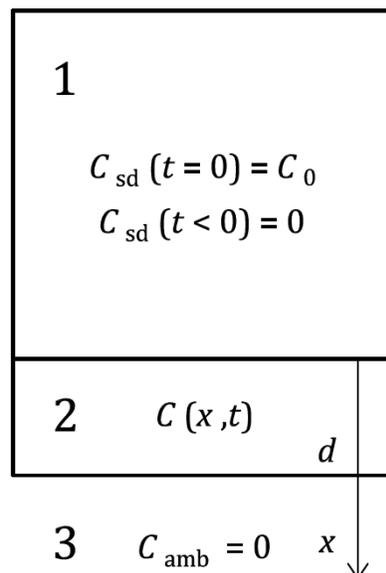


Figura 4.1: Representación gráfica de los valores experimentales de la concentración de radón en el interior de la cámara cuando estos se encuentran por debajo del límite inferior de detección. [16]

En el interior de la cámara, una vez se introduce el radón, la concentración de radón disminuye por su decaimiento y por la transferencia y difusión a través de la membrana muestra. El proceso de transferencia del radón a través de la membrana viene descrito por las siguientes ecuaciones [16]:

$$\frac{\partial C_{sd}(t)}{\partial t} = -\lambda \cdot C_{sd}(t) - \frac{S_s}{V_{sd}} \cdot 0.01 \cdot [C_{sd}(t) - C(0, t)] \quad (4.1)$$

$$\frac{\partial C(x, t)}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C(x, t)}{\partial x^2} - \lambda \cdot C(x, t) \quad (4.2)$$

Donde C_{sd} es la concentración de actividad de radón la cámara, λ es la constante de decaimiento del radón, S_s es la superficie de la membrana y V_{sd} el volumen de la cámara, además $C(x, t)$ es la concentración de actividad del radón en la muestra.

Estableciendo una serie de condiciones de contorno [16]:

$$C_{sd}(t = 0) = C_0; C(x, 0) = 0 \quad (4.3)$$

$$-D \frac{\partial C(0, t)}{\partial x} = 0.01 \cdot [C_{sd}(t) - C(0, t)] \quad (4.4)$$

$$-D \frac{\partial C(d, t)}{\partial x} = 0.01 \cdot [C(d, t) - C_{amb}]; C_{amb} = 0 \quad (4.5)$$

Con d el espesor de la lámina y C_{amb} la concentración de radón en el aire fuera de la cámara; llegando a la siguiente solución:

$$C_{sd}(t) = C_0 \cdot f(t, D, \lambda, V_{sd}, S_s, d) = C_0 \left[\int_0^t e^{\lambda(\tau-t)} F(\tau) d\tau + e^{-\lambda t} \right] \quad (4.6)$$

En primer lugar, se debe evaluar las pérdidas que pueda tener el sistema diseñado respecto a la concentración de radón. La estanqueidad al radón de la cámara se considera satisfactoria cuando la tasa medida de disminución de la concentración de actividad del radón en la cámara se aproxima a la tasa calculada con la siguiente ecuación:

$$R_L = \exp[-(\lambda + \lambda_L)t] \quad (4.7)$$

Siendo λ_L el valor de la tasa de pérdidas de radón del sistema, considerando que es inferior al 20 % de la tasa de decaimiento del radón $\lambda_L < 0.2\lambda$ [16].

Las pérdidas del sistema se mide cuando este se encuentra completamente cerrado por materiales impermeables al radón buscando evaluar la tasa de disminución de la concentración de actividad del radón en la cámara que está determinada por la siguiente expresión:

$$R_m(t) = \frac{C_m(t_i)}{C_m(t_0)} \quad (4.8)$$

Donde $C_m(t)$ es el valor promedio medido de la concentración de actividad del radón en el tiempo i . Con todo esto, el valor experimental del coeficiente de difusión del radón de la muestra se determina seleccionando un valor de D con el que la tasa calculada de concentración de actividad del radón disminuye en la cámara mediante la siguiente expresión [16]:

$$R_c(t) = \frac{C_{sd}(t_i)}{C_{sd}(t_0)} \cdot \exp[-\lambda_L(t_i - t_0)] \quad (4.9)$$

Todo esto bajo la condición de que, con la constante de decaimiento de las pérdidas del sistema λ_L , se aproxime a la función experimental $R_m(t)$ para cada muestra en función del volumen de la cámara o las dimensiones de la membrana.

Sin embargo, hay que establecer unos límites de detección para el dispositivo experimental previamente desarrollado. El comportamiento de la función $R_m(t)$ depende del coeficiente de difusión del radón de la muestra, del tamaño de la misma y del volumen de la cámara, y se pueden dar los siguientes tres casos.

Caso 1: Los valores experimentales están por debajo del límite inferior de detección, es decir, aquel que está descrito por las pérdidas del sistema, lo que se corresponde con un coeficiente de difusión inferior al mínimo detectable 4.2. Por tanto, no es posible determinar con precisión el coeficiente de difusión del radón para aquellas disminuciones en la concentración que sean inferiores a las pérdidas de la propia cámara donde se introduce el gas, lo que lleva a resultados cuya incertidumbre es demasiado alta.

$$R_m(t_i) \geq R_{min}(t_i)$$

Donde el límite inferior viene descrito por la siguiente expresión:

$$R_{min}(t_i) = \exp[-(\lambda + \lambda_L + 2 \cdot s(\lambda_L) \cdot (t_i - t_0))] \quad (4.10)$$

Con $s(\lambda_L)$ la incertidumbre en la medida de las pérdidas del sistema.

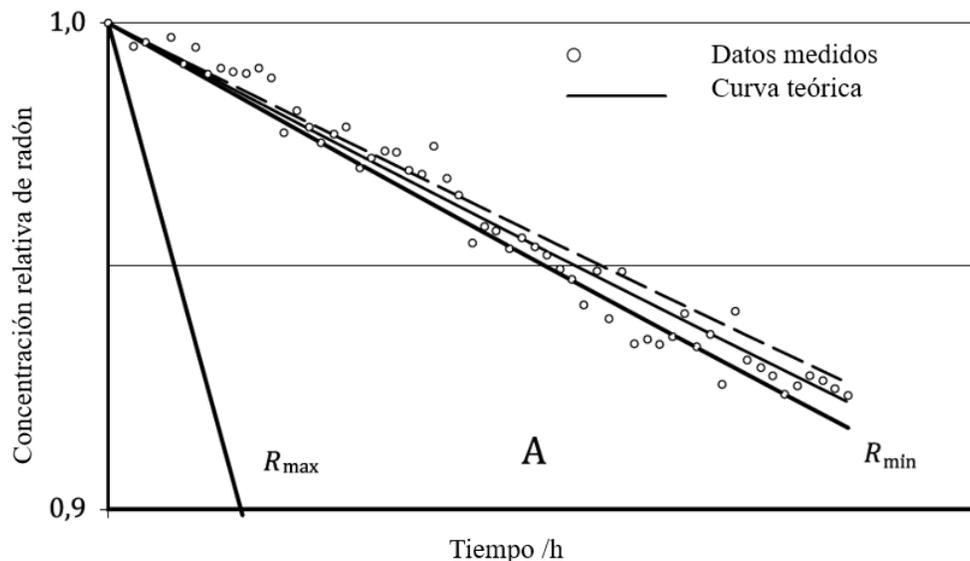


Figura 4.2: Representación gráfica de los valores experimentales de la concentración de radón en el interior de la cámara cuando estos se encuentran por debajo del límite inferior de detección. [16]

Caso 2: Los valores experimentales de las medidas de la concentración de la actividad de radón se encuentran entre los límites de detección, esto significa que el coeficiente de difusión para esos casos está entre los límites medibles 4.3.

$$R_{min}(t_i) \geq R_m(t_i) \geq R_{max}(t_i) \quad (4.11)$$

Donde el límite superior de detección R_{max} está definido como la disminución de la concentración de radón a la mitad en un período de 12 horas [17].

$$R_{max}(t_i) = \exp \left[-1.6 \cdot 10^{-5} s \cdot (t_i - t_0) \right] \quad (4.12)$$

Por lo que si los valores experimentales se encuentran en este rango de detección, se puede asumir que los resultados de las medidas son satisfactorios dentro de los errores experimentales.

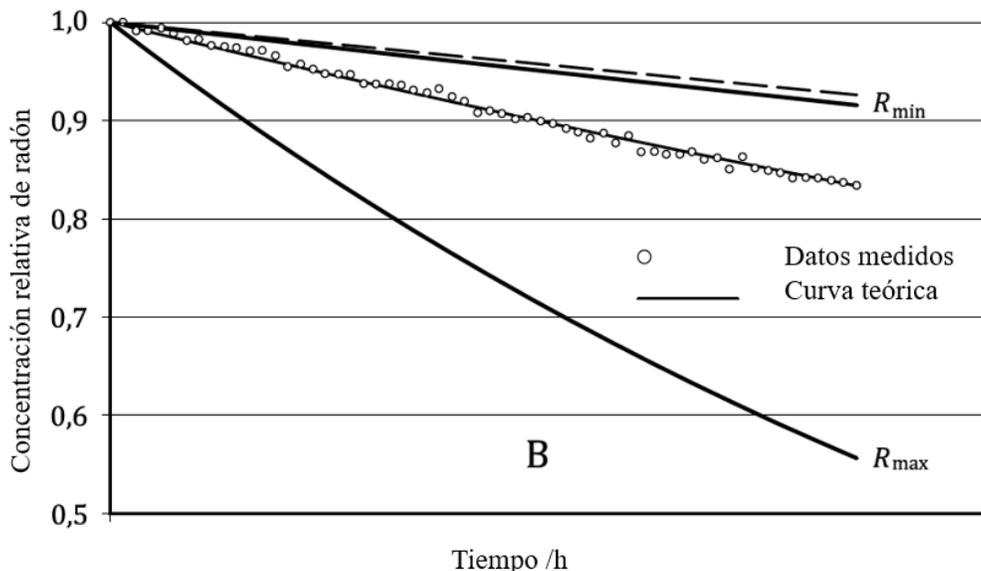


Figura 4.3: Representación gráfica de los valores experimentales de la concentración de radón en el interior de la cámara cuando estos se encuentran entre los límites de detección. [16]

Caso 3: Aquel en el que los resultados experimentales no son apropiados para el dispositivo experimental diseñado, es decir, cuando la curva de valores experimentales se encuentra por encima del límite superior de detección R_{max} , lo que lleva a un coeficiente de difusión demasiado elevado 4.4, no pudiendo diferenciarlo de la difusión del radón en el aire.

$$R_{min}(t_i) < R_{max}(t_i)$$

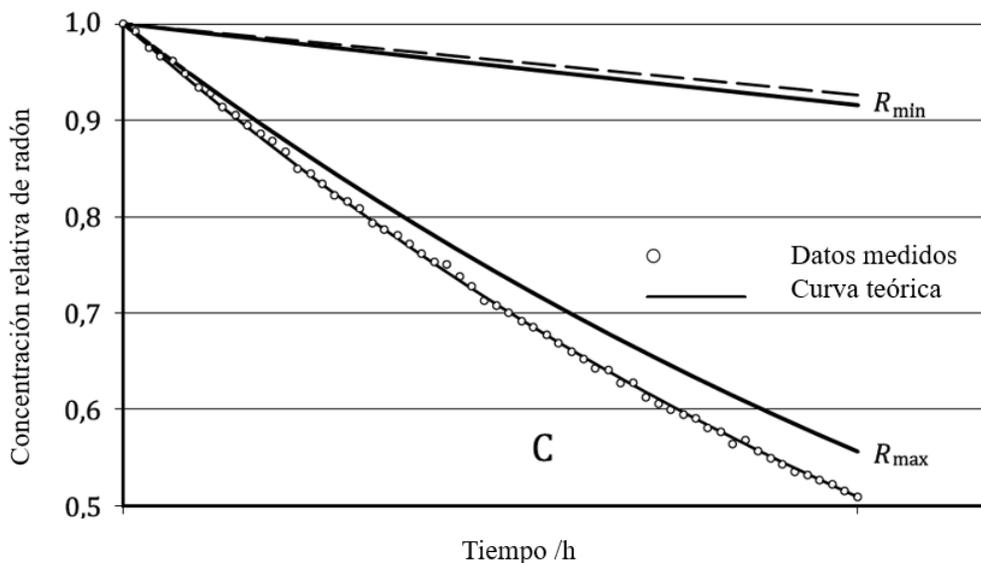


Figura 4.4: Representación gráfica de los valores experimentales de la concentración de radón en el interior de la cámara cuando estos se encuentran por encima del límite superior de detección. [16]

4.2. Métodos para la medir el coeficiente de difusión

Se dispone de dos métodos en el estudio de la difusión del radón a través de membranas. En el primer método se tienen dos contenedores o cámaras, entre ellos se sitúa la membrana a estudiar y se mide la concentración de la actividad de radón en el contenedor receptor para determinar la difusión del gas [18]. Por otro lado, el segundo método consiste en utilizar una única cámara y medir la difusión del radón colocando la membrana sobre el contenedor evaluando la variación de la concentración de radón en la propia cámara. En ambos casos, la fuente inicial de radón de actividad y concentración son conocidas.

4.2.1. Medida de la concentración por ambas caras

En el LaRUC, para evaluar el coeficiente de difusión al radón de las membranas se utiliza el método de medida de la concentración por ambas caras, en concreto la metodología C descrita en la ISO:11665-13 [18], que consiste en la determinación del coeficiente de difusión del radón durante la fase de difusión estacionaria del radón establecida durante la ventilación del contenedor receptor.

La muestra se coloca sobre el contenedor fuente y se introduce una fuente de radón en el mismo registrando el aumento de la concentración. Después de alcanzar la difusión estacionaria del radón a través de la muestra, se cierra la cámara receptora y la concentración de radón comienza a incrementarse en la misma, empezando la medición como se observa en la siguiente figura 4.5:

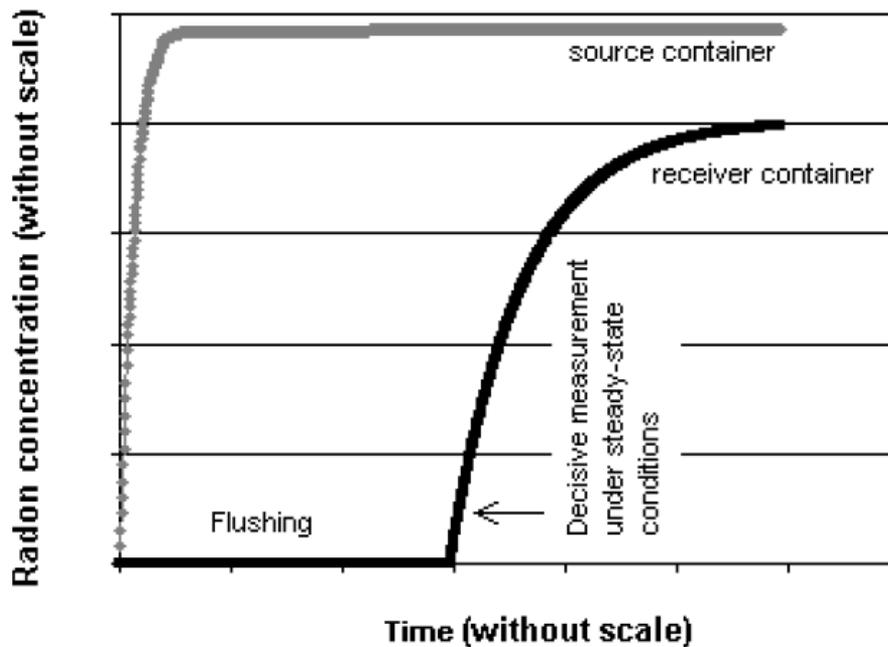


Figura 4.5: Procedimiento de medida de acuerdo al método C [18].

El intervalo de tiempo entre medidas sucesivas de concentraciones y la duración del proceso de medida dependen del procedimiento matemático aplicado para la determinación del coeficiente de difusión.

4.2.2. Medida de la concentración por una cara

Para determinar el coeficiente de difusión al radón por el método de medición de la concentración por una cara se dispone de una cámara en la cual se introduce radón con una fuente externa. Con el fin de medir la difusión de radón, la membrana se fija sobre la cámara como se observa en 4.6. En este caso la única cámara actúa como fuente y receptor, llenándola, en circulación cerrada según la actividad de la fuente de radón como se muestra en la figura 4.6. De este modo, se mide la variación de la concentración de radón (debido a la desintegración radiactiva y la fuga de todo el recipiente, así como a la difusión a través de la membrana). A continuación se muestra un esquema del procedimiento de llenado de la cámara y la difusión a través de la membrana.

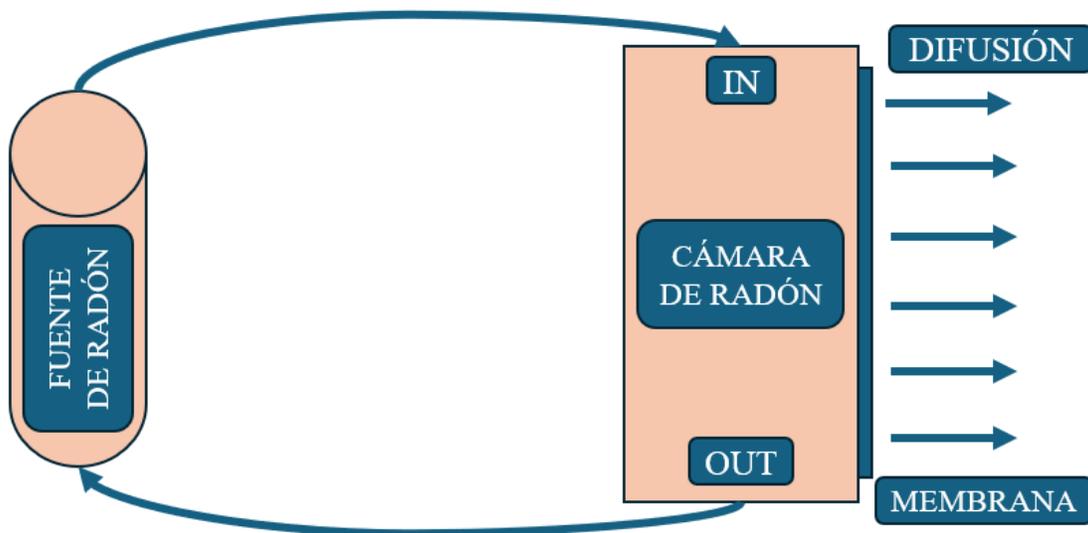


Figura 4.6: Esquema del dispositivo para medir la difusión de radón en el lado de la fuente, mediante una membrana fijada a la cámara.

Para modelar la difusión del radón a través de la membrana se utiliza el método matemático descrito en Papp y Cosma (2014) [19], una ecuación unidimensional de difusión que incluye el propio proceso de difusión y el decaimiento del propio gas ^{222}Rn :

$$\frac{\partial C(x, t)}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C(x, t)}{\partial x^2} - \lambda \cdot C(x, t) \quad (4.13)$$

Donde $C(x, t)$ es la concentración de radón que depende de la posición x y el tiempo t , λ es la constante de decaimiento total, es decir, la suma de la del radón y la de las pérdidas del sistema y D el coeficiente de difusión de la membrana estudiada. La solución de esta ecuación

depende de la probabilidad $p(x,t)$ de difusión de partículas de radón en cada posición (x) y tiempo (t) [19]:

$$p(x, t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi Dt}} \int_0^d e^{-\frac{x^2}{4Dt}} dx \quad (4.14)$$

Integrando se tiene que $p(x = d, t) = 1/2 \cdot \text{erf}(d,t)$, siendo d el espesor de la membrana estudiada, y erf una función error. Mediante una aproximación y un cambio de variable $u=d/\sqrt{2Dt}$, la función error se puede expresar como [20]:

$$\text{erf}(d, t) = \left[1 - \left(1 + a_1 \cdot u + a_2 \cdot u^2 + a_3 \cdot u^3 + a_4 \cdot u^4 \right)^{-4} \right] \quad (4.15)$$

$$a_1 = 0.278393; a_2 = 0.230389; a_3 = 0.000972; a_4 = 0.078108 [20]$$

Para caracterizar la difusión por este método se tienen las siguientes condiciones de contorno:

$$C(t = 0) = C_0 \quad C(t \rightarrow \infty) = 0$$

Y la solución a la ecuación 4.13 es:

$$C(x, t) = C_0 \cdot 2 \cdot p(x, t) \cdot e^{-\lambda t} \quad (4.16)$$

En conclusión, la relación para determinar el coeficiente de difusión para cada membrana D en función de su espesor d es [19]:

$$C(d, t) = C_0 \cdot \text{erf}(d, t) \cdot e^{-\lambda t} \quad (4.17)$$

4.3. Factores influyentes en el procedimiento

Durante el procedimiento de medida de la concentración de radón en el interior de la cámara para evaluar el coeficiente de difusión de la membrana se deben tener en cuenta ciertas variables que pueden afectar a la precisión de las medidas [16]:

Presión y temperatura: Para evitar fluctuaciones de presión en la cámara debido a efectos térmicos externos o variaciones en la temperatura ambiente, el montaje experimental no debe ser expuesto a la luz solar con el fin de evitar cambios de temperatura a lo largo de los intervalos de medición. Todo esto con el fin de que la superficie de la membrana no varíe su forma de modo que la difusión del radón sea aproximadamente equivalente en todos los puntos de la muestra.

Humedad ambiente: La humedad también puede influir en el análisis de las membranas. Al igual que con las variaciones térmicas, cambios en la humedad pueden hacer que la superficie de contacto entre el radón y la muestra no sea uniforme, afectando a la precisión de las medidas.

Concentración inicial de radón: Como se ha explicado anteriormente, el proceso de llenado de la cámara es siempre el mismo. Esto con el fin de trabajar continuamente con las mismas concentraciones de radón para así evaluar todas las membranas bajo las mismas condiciones y estudiar decaimientos similares. Aunque, como se verá posteriormente, el análisis de datos se hará con las concentraciones relativas de radón en función del tiempo.

Pérdidas del sistema: El principal factor que influye en los resultados de las pruebas es la fuga de radón. Por ello, ambos orificios por los que entra y sale el flujo de aire para introducir el radón desde la fuente a la cámara son también sellados con el mismo acrílico a fin de minimizar las fugas.

Intervalos de medida: Los intervalos de medición de la concentración de radón en la cámara son siempre periódicos con un tiempo de una hora para mantener las mismas condiciones en cada experimento.

Peridos de obtención de datos: Para mantener la incertidumbre estadística de la tasa de disminución de la concentración de actividad del radón en la cámara los experimentos mantendrán siempre la misma duración. Esta será de 3 a 4 días, lo que resulta en intervalos de entre 70 y 90 horas, para además de fijar las condiciones del experimento, facilitar la reproducibilidad del mismo.

5

Dispositivo experimental

La determinación del coeficiente de difusión de cada una de las membranas a evaluar se hará midiendo la variación de la concentración de radón en el interior de los contenedores con equipos de radon scout, que permiten hacer medidas periódicamente cada hora. Con ello, se estudia el decaimiento en el interior del mismo y con los modelos previamente descritos se obtiene experimentalmente el valor del coeficiente de difusión.

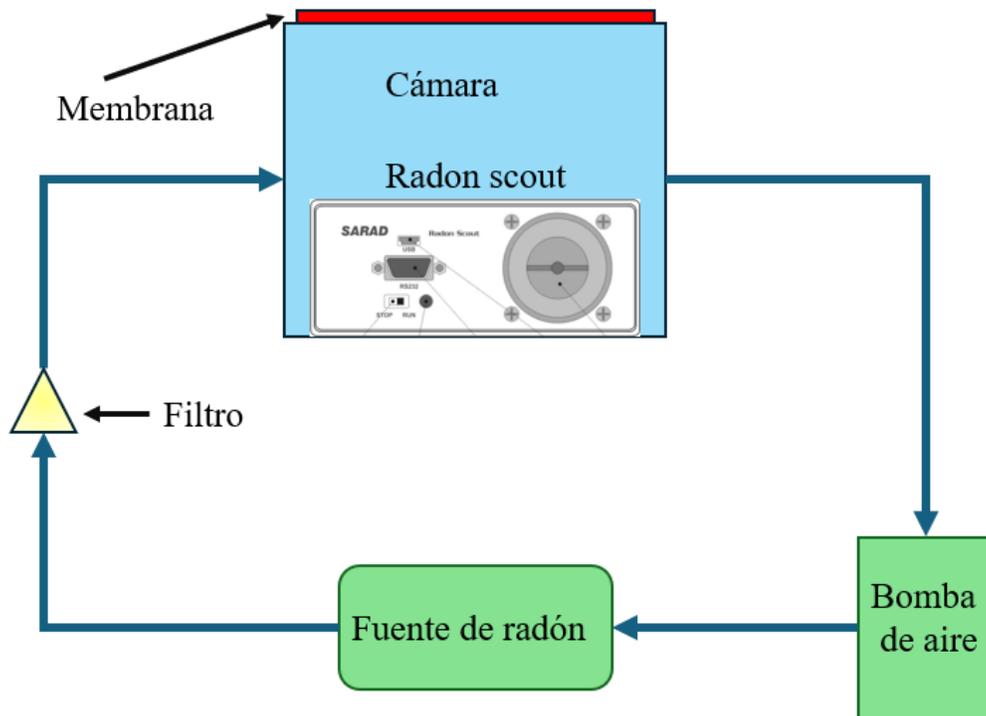


Figura 5.1: Esquema del dispositivo experimental para el análisis de membranas.

5.1. Fuente de radón

Se dispone de una fuente radiactiva de ^{226}Ra tipo Pylon con forma cilíndrica cuyo interior está pintado con radio. La fuente tiene factor de emanación 1, por tanto, la totalidad del gas radón producido en su interior pasa al volumen de la cámara.



Figura 5.2: Fuente de radón Pylon.

La variación de la concentración de radón en el interior de la fuente tiene dos contribuciones, por un lado la producción por unidad de tiempo debida al radio, y por otro lado, el propio decaimiento del radón, de modo que la concentración de radón varía según la siguiente expresión:

$$dC = -C\lambda dt + \Phi dt \quad (5.1)$$

Siendo C y Φ la concentración y la producción de radón respectivamente; de modo que la solución a la ecuación diferencial es [21]:

$$C(t) = C_0 e^{-\lambda t} + \frac{\Phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (5.2)$$

Como se discutió previamente, en la descripción del método de obtención de medidas, la fuente se purga inicialmente de modo que la concentración inicial de radón en el interior de la fuente al momento de comenzar la producción para posteriormente introducirlo en la cámara es cero.

La actividad de 226-radio en el interior de la fuente es de 20.85 kBq, de modo que la producción de radón, teniendo en cuenta que su constante de decaimiento es $\lambda_{Rn} = 0.0076\text{h}^{-1}$, es:

$$\Phi = A\lambda = 20.85 \cdot 0.0076 \cdot \frac{1}{60} = 2.641 \text{ Bq/min} \quad (5.3)$$

Este valor de la producción es coherente con el mostrado en la fuente en la figura 5.2. Además, se puede expresar la concentración de radón en el interior de la fuente por unidad de volumen, y por tanto la que se utiliza el experimento como:

$$C(t) = \frac{\Phi}{V\lambda}(1 - e^{-\lambda t}) = \frac{A\lambda}{V\lambda}(1 - e^{-\lambda t}) \quad (5.4)$$

Siendo t el tiempo que permanece cerrada la fuente y por tanto el tiempo de producción de radón. No obstante, durante el tiempo de llenado de la cámara se sigue produciendo radón en el interior de la fuente, por lo que también se debe tener en cuenta.

$$C(t) = \frac{20.85 \text{ kBq}}{0.02567 \text{ m}^3}(1 - e^{-t}) \quad (5.5)$$

El radio se encuentra en estado sólido, por tanto, con el fin de evitar salga de la fuente por deterioro de la misma, esta está equipada con dos filtros externos de fibra de vidrio de $0.8 \mu\text{m}$ de espesor [21]. Además se coloca un filtro a la salida de la fuente que solo permite el paso de gases.

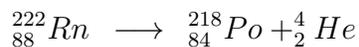


Figura 5.3: Filtro que limita el paso de materiales sólidos como el radio presente en la fuente de radón, permitiendo el paso del mismo, que se encuentra en estado gaseoso, hasta la cámara.

5.2. Detectores de radón: Radon scout

El monitor de radón usado en el experimento se trata de un radon scout (Sarad GmbH). Su procedimiento de detección de radón se basa en el uso de un detector de silicio, además de incluir diversos sensores que permiten medir tanto la temperatura, como la humedad.

La concentración de radón no se mide directamente, si no que esta se determina a partir de los productos de decaimiento del mismo, concretamente aquellos cuya tiempo de vida medio es relativamente corto. Como se ve en la figura 3.1, el ^{222}Rn al decaer en ^{218}Po emite una partícula alfa [22]:



Debido a la emisión de una partícula alfa, algunos electrones de los átomos de ^{218}Po son dispersados ionizándolos, y quedando durante un pequeño espacio de tiempo con carga positiva. Debido al campo eléctrico formado por la diferencia de potencial de los detectores, los iones se adhieren al detector.

Este proceso tiene una eficiencia del 50%, pues alrededor de la mitad de las partículas son emitidas en la dirección del detector y el resto en la opuesta, por lo que estas nunca quedan registradas. Es decir, a partir de la concentración de ^{218}Po registrada, con la conversión del detector, es posible determinar la concentración de radón en el interior de la cámara.

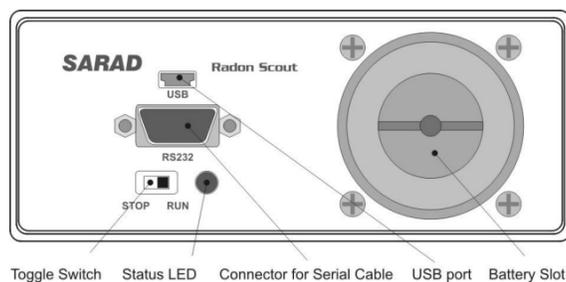


Figura 5.4: Esquema del detector radon scout. [23]



Figura 5.5: Detector radon scout para medir la concentración de radón en el interior de la cámara.

Atendiendo a la figura 3.1, tras el decaimiento del ^{218}Po se dan dos desintegraciones beta y una alfa del ^{214}Po . En el modo lento de medición del radon scout, se utiliza además esta desintegración alfa pues tiene una energía característica distinta y por tanto es posible diferenciarlos por espectroscopía. Todo esto permite aumentar la estadística para reducir la incertidumbre en la determinación de la concentración de radón.

5.3. Cámara

Para evaluar cada una de las láminas, esta se sitúa en la superficie de una de las caras de la cámara. Se trata de un recipiente de 29.5 cm de lado, hecho de acero, un material que resulta impermeable al radón cuyo volumen es de $V = 0.02567 \text{ m}^3$.



Figura 5.6: Cámara de aluminio en la que se introduce el radón. En la segunda imagen se puede ver el detector radon scout situado en el interior.

A cada lado la cámara tiene un orificio para la entrada y salida de aire, que mediante el flujo de la bomba permite introducir en su interior el radón producido en la fuente. Ambos orificios están sellados con un acrílico impermeable al radón con el fin de mantener la estanqueidad de la cámara.

5.4. Consecución de datos

Una vez transcurrido el tiempo de medida, se procede a recoger los datos obtenidos. Mediante el programa 'RadonVision' se leen los datos registrados por los radon scout. En cada experimento se obtiene algo similar a lo siguiente:

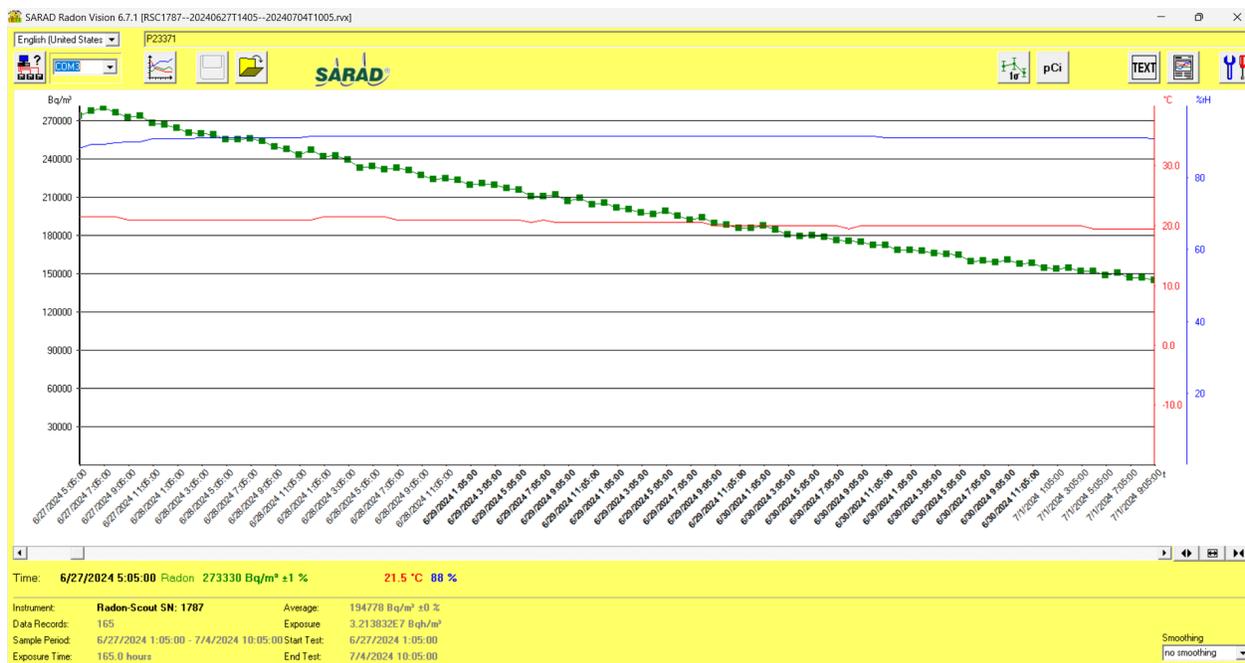


Figura 5.7: Variación de la concentración de radón en la cámara medida por los equipos radon scout. El eje vertical representa la concentración de radón en la cámara en Bq/m^3 y el eje horizontal muestra el tiempo en horas.

En verde se puede visualizar el decaimiento en la concentración de radón que tiene lugar en el interior de la cámara, en rojo la variación de la temperatura, que como se observa en 5.7, es aproximadamente constante durante todo el tiempo de recogida de datos. Además, en azul se muestra la humedad en el interior. Si la humedad en el interior de la cámara asciende por encima del 85 % los equipos radon scout no son capaces de medir la concentración de radón y los valores caen a cero.

Estas variaciones se producen principalmente por el acrílico impermeable al radón que se utiliza para adherir y sellar la membrana a la cara de la cámara que está abierta. Al secarse y evaporarse la humedad queda en el interior del volumen de la cámara influyendo en las medidas. Como solución se introducen unas muestras de secante que permiten mantener la humedad constante, de modo que los radon scout pueden realizar las medidas de la concentración de radón manteniendo siempre unas condiciones similares. No obstante, no se debe introducir una gran cantidad de secante, ya que pueden absorber parte del radón en la cámara influyendo en los decaimientos observados y en consecuencia en el análisis del coeficiente de difusión de la membrana.

Una vez recopilados los datos, se lleva a cabo el análisis haciendo uso de los métodos descritos anteriormente. Por un lado, de acuerdo con la ISO [16], se estudian los límites de detección inferior y superior del sistema experimental para determinar en qué rango es posible evaluar el coeficiente de difusión del radón para las membranas utilizadas.

A continuación, mediante el método de medida de la concentración por una cara descrito en

Papp y Cosma (2014) y se realiza un ajuste a la ecuación [4.17] que permita definir la curva que mejor se ajuste a los valores experimentales. Aquella curva que minimice la diferencia con los datos experimentales será la descrita por el valor del coeficiente de difusión correspondiente a ese experimento.

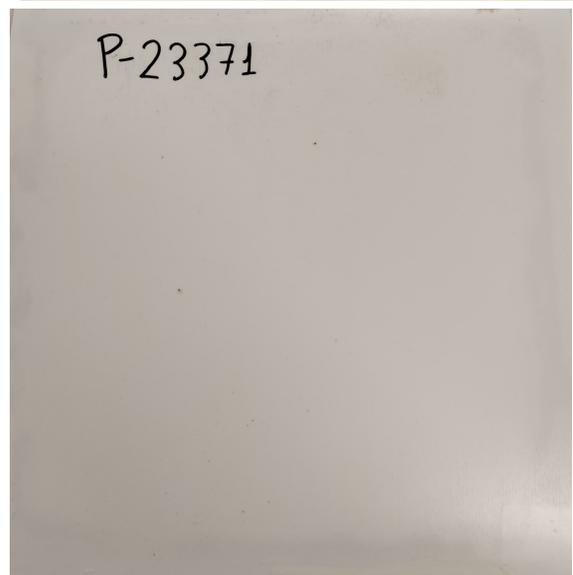
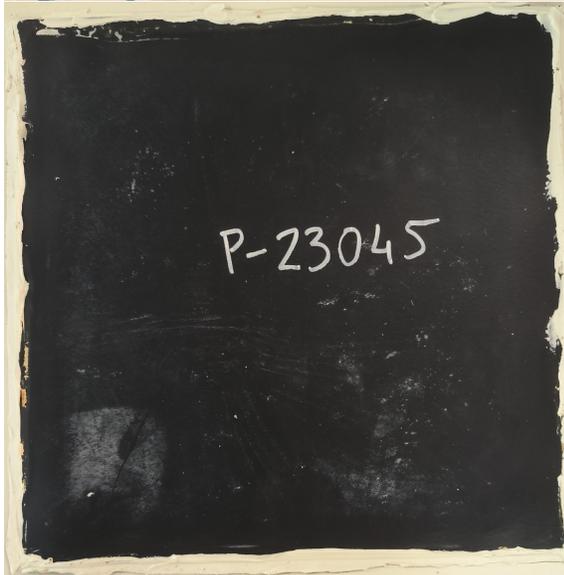
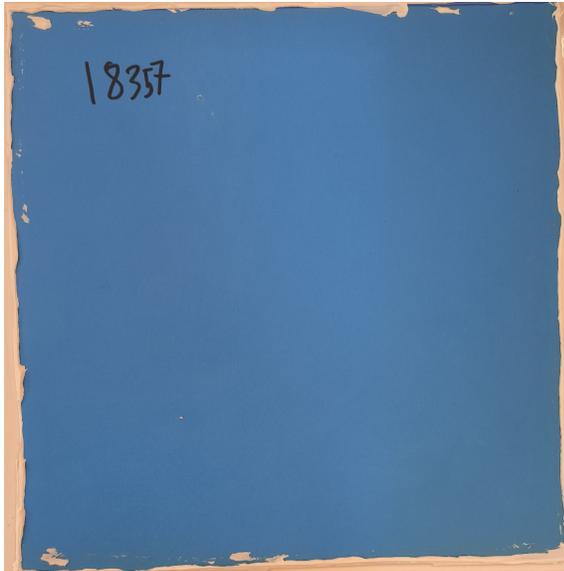
Para ello se ha desarrollado un código que permite hacer este procedimiento directamente. El código se centra en el análisis del comportamiento de membranas respecto a la difusión de radón, utilizando la ecuación del método de análisis de la concentración por una cara, Papp y Cosma (2014), 4.17 para estimar el coeficiente de difusión. El código toma varios parámetros, desde la concentración inicial de radón (C_0) del experimento, el espesor de la membrana (d) estudiada, además de la constante de decaimiento total del sistema.

Internamente, otra función describe el decaimiento de la actividad del radón en función del tiempo y el coeficiente de difusión (D) devolviendo la concentración teórica de radón a diferentes tiempos, considerando tanto la difusión como el decaimiento radiactivo. Finalmente el código ajusta la curva teórica a los datos experimentales para determinar el valor óptimo de D que minimiza el error entre los datos observados y el modelo teórico.

Para ello, se realiza un proceso iterativo estableciendo un valor inicial y final del coeficiente de difusión. Asumiendo que el valor del coeficiente de la membrana es el valor inferior del proceso iterativo, se resuelve la ecuación del modelo para determinar la concentración de radón que debiera haber en la cámara. El proceso se repite para el siguiente valor calculando de nuevo la concentración de radón esperada. Repitiendo el proceso reiteradamente, se evalúa todo el intervalo hasta alcanzar el valor máximo establecido. De todos ellos, se devuelve el correspondiente a la curva descrita por el valor de D que minimice la diferencia entre la concentración esperada y la medida experimental.

5.5. Membranas ensayadas

Se tiene un conjunto de membranas para evaluar su coeficiente de difusión al radón mediante el método descrito previamente. Estas membranas están formadas por diversos materiales cuya composición es desconocida y están adheridas al orificio superior del contenedor cuya superficie es de 28×28 cm con masilla acrílica.



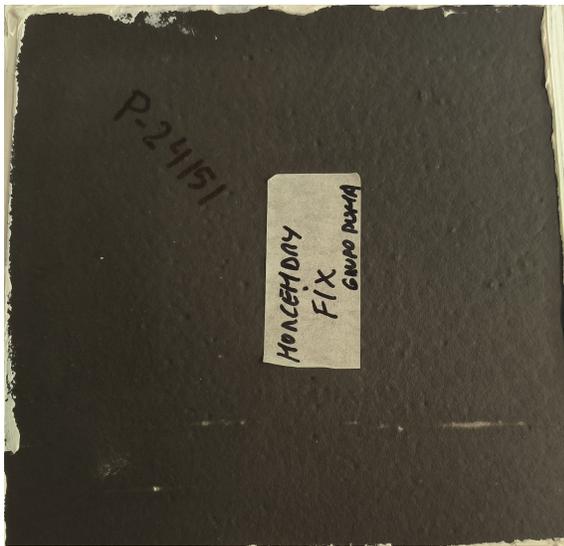


Figura 5.9: Conjunto de membranas que se van a analizar.

A continuación se muestra el montaje experimental completo para el proceso de medida de una de la membranas,

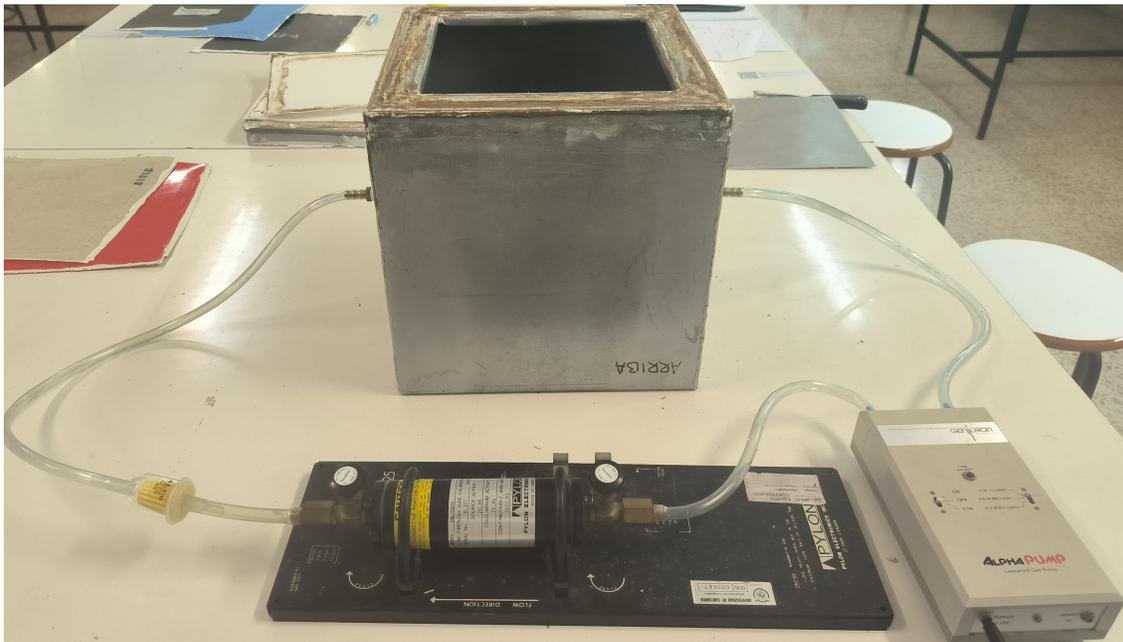


Figura 5.10: Montaje experimental completo. Se muestra el orificio donde quedaría colocada la membrana en el proceso de llenado de la cámara con radón.

6

Validación del modelo

Previo a analizar los resultados obtenidos tras la medida de cada membrana, se verifica que tanto las ecuaciones del modelo teórico como el software desarrollado permiten estudiar el coeficiente de difusión y ofrecen resultados coherentes.

6.1. Pseudocódigo

A continuación se describen los elementos y procesos que utiliza el programa de análisis escrito en Python. Primero se definen los rangos de aplicación en los que se puede evaluar el coeficiente de difusión al radón según el método descrito por la ecuación 4.17.

Pérdidas del sistema: Se definen ciertas constantes, la concentración inicial de radón para el sistema cerrado ($C0_{tapa}$) en Bq/m³. La constante de pérdidas del sistema (λ_{min}) es 0.0076 h⁻¹, y su incertidumbre $s\lambda_{min} = 0.0004$. Se leen y normalizan los datos de pérdidas del sistema desde el archivo 'tapa.txt' y se generan los valores de tiempo para los mismos. Se define la función de pérdidas del sistema r_{min} . Esta función calcula la concentración usando una ecuación exponencial que incluye λ_{min} y $s\lambda_{min}$ de acuerdo a lo descrito por la ISO [16]. Se calculan los valores de r_{min} usando $t_{perdidas}$ y se grafican los datos. Lo mismo se hace al final del código para r_{max} pero estableciendo un valor fijo para $D=1\cdot 10^{-10}$ m/s².

Cálculo del coeficiente de difusión: A continuación, se definen algunas constantes adicionales para la ecuación de decaimiento. Los coeficientes a1, a2, a3, a4 se establecen en 0.278393, 0.230389, 0.000972 y 0.078108 respectivamente [20]. La constante de decaimiento λ se define como la de las pérdidas del sistema.

Se define la función $rn_calculated$ para calcular la concentración teórica. En esta función, se multiplica D por 3600 para convertirlo a m²/h. Se calcula la variable u como d (espesor de la lámina) dividido por la raíz cuadrada de $2\cdot D\cdot t_{datos}$. Esta variable u se usa para calcular una función de error personalizada erf_custom [20] del modelo de medida de la concentración por una cara [19]. Luego, se calcula la concentración esperada $C_{Rn_p_predic}$ utilizando erf_custom y una exponencial que incluye λ . Finalmente, se devuelve C_Rn_predic .

Se define la función $encontrar_D_optimo$ para ajustar los datos experimentales y encontrar el valor de D que mejor se ajuste a los mismos. En esta función, se define una función interna r que llama a $rn_calculated$ y haciendo uso de $curve_fit$ ajusta los datos y se obtiene el valor experimental de D que después se imprime por pantalla.

La función *dibujar_curvas* se define para dibujar las curvas teóricas y experimentales. En esta función, se cargan los datos del archivo especificado que contiene los valores de la concentración y se normalizan con la concentración inicial C_0 . Se crea un array de tiempos t_{datos} y luego se extrae el nombre de la membrana del nombre del archivo. Mediante la función *encontrar_D_optimo* se calcula y grafica la curva teórica con este valor de D , y además, se calculan y grafican las curvas teóricas cercanas a un orden de magnitud del D óptimo.

Mostrar los datos: Se define la función *mostrar_grafico* para diseñar el gráfico final. En esta función, se configuran las etiquetas para los ejes y el título del gráfico. También se ajustan los límites del gráfico, y se añade una leyenda para después presentarlo.

Introducción de datos: Se solicita al usuario que introduzca el nombre del archivo de datos de la membrana y el espesor de la lámina en metros. Finalmente, se llama a la función *dibujar_curvas* con los parámetros proporcionados por el usuario y se presenta el gráfico llamando a *mostrar_grafico*.

6.2. Reproducción de curvas teoricas

De acuerdo a lo descrito previamente, una vez se han determinado las pérdidas del sistema, se han dibujado las curvas teóricas de la evolución de la concentración de radón en el interior de la cámara para una serie de valores del coeficiente de difusión suponiendo una membrana de 1 mm de espesor y una constante de pérdidas del sistema de $\lambda = 0.0076 \text{ h}^{-1}$:

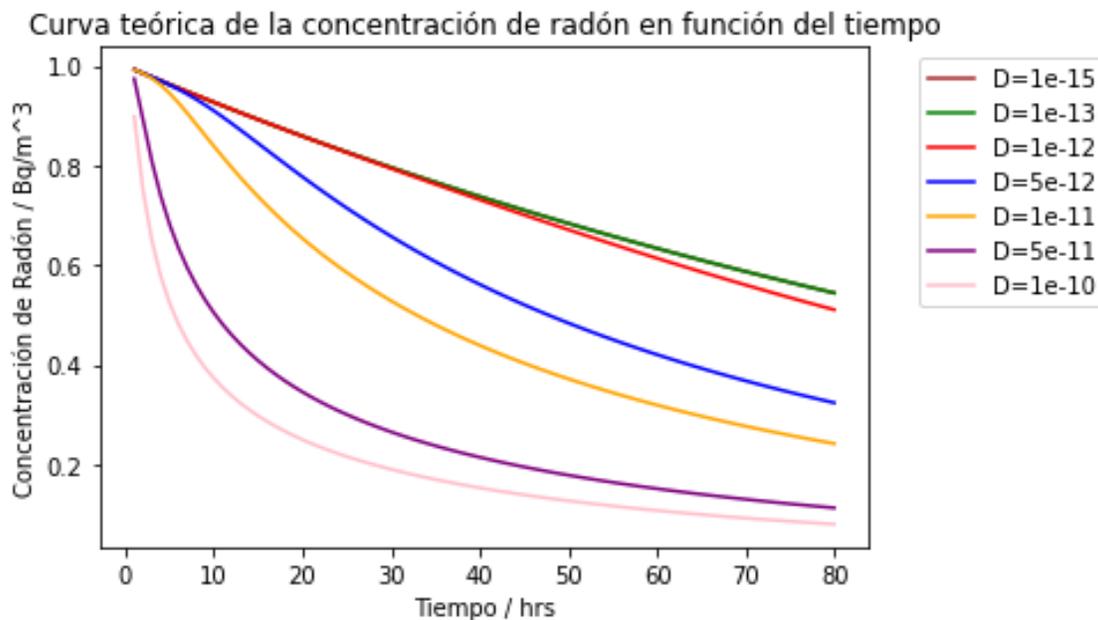


Figura 6.1: Representación gráfica de una serie de curvas para distintos valores del coeficiente de difusión de acuerdo al modelo de medida de la concentración de radón por una cara.

Por un lado, se observa el comportamiento exponencial descrito por las diferentes curvas con una mayor pendiente cuanto mayor es el valor del coeficiente de difusión, lo que es consecuente con lo mostrado por la solución de la ecuación que describe la difusión del radón a través de la membrana que además tiene en cuenta el decaimiento del radón, [4.17].

Se puede observar en la figura [6.1] que, cuanto mayor es el valor del coeficiente de difusión, mayor es la disminución de la concentración de radón para el mismo valor de tiempo, lo que es coherente con lo esperado, pues esto indica que la membrana difunde mejor el radón dejándolo escapar con mayor facilidad al ambiente y viceversa.

6.3. Validación del método iterativo

Ahora, tomando los datos de una de las muestras del artículo, Papp y Cosma (2014), en el que se describe el método de análisis para la determinación del coeficiente de difusión en función del espesor de la membrana d [5.4], se va a tratar de reproducir el procedimiento de análisis para verificar el funcionamiento del código desarrollado.

En primer lugar, se tienen los datos de la muestra C del método de análisis por una cara [19]. Tal y como se explicó, se estudia la concentración relativa de radón. Se puede observar que, de nuevo, la concentración de radón decae siguiendo una tendencia exponencial, lo que es coherente puesto que en el interior de la cámara se supone que no debe haber ninguna fuente que produzca radón.

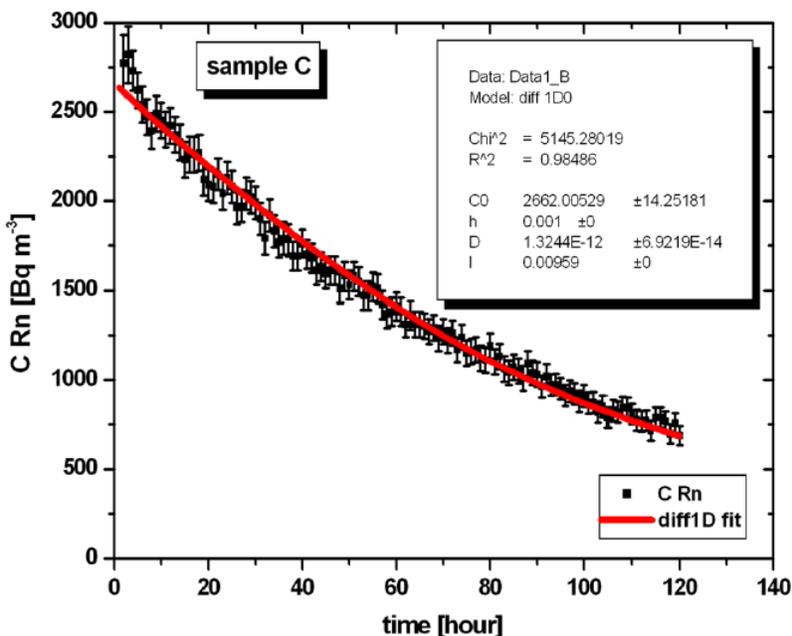


Figura 6.2: Representación gráfica de los datos experimentales de la muestra C y ajustes de las concentraciones de radón calculadas en función de la modelo matemático descrito en Papp y Cosma (2014) [19].

De acuerdo con la solución de la ecuación que modela la difusión del radón a través de la membrana [5.12], es decir la ecuación 4.17, esta muestra un comportamiento exponencial además de la contribución de la difusión por la membrana que viene descrita por el término de la función error, lo que se corresponde con la curva de la figura 6.2.

Atendiendo a los resultados de la muestra C ($\lambda = 0.00959 \text{ h}^{-1}$ y $d = 1 \text{ mm}$) proporcionados en [19], el valor del coeficiente de difusión es $D = 1.3244 \pm 0.0692 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$. El valor ofrecido por el proceso iterativo desarrollado en este trabajo para el análisis de datos es $D = 1.3 \pm 0.5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$, que es consistente con el valor ofrecido anteriormente teniendo en cuenta las incertidumbres.

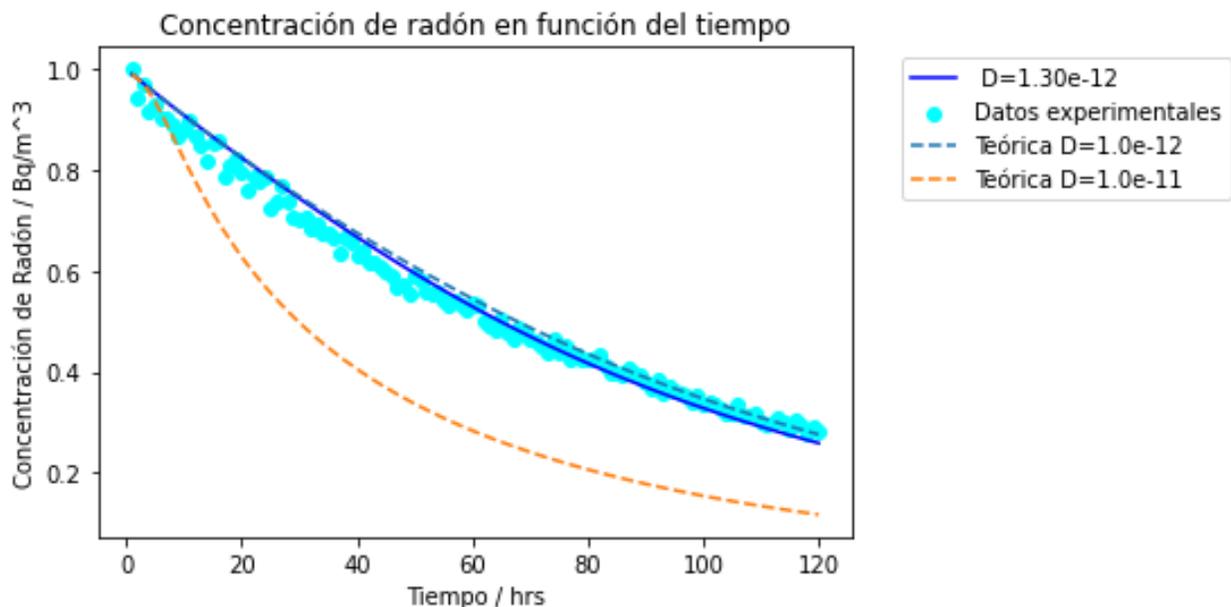


Figura 6.3: Comparación gráfica de las curvas teóricas descritas por la ecuación 4.17 con los valores experimentales de la muestra C [19].

En conclusión, tanto la reproducción de las curvas teóricas como el análisis de datos permite llevar a cabo el tratamiento de los datos experimentales que se recojan en el laboratorio, por lo que se verifica la validez tanto del código desarrollado como de los valores ofrecidos por el mismo.

7

Análisis y resultados

7.1. Datos de las membranas

Para el desarrollo de los experimentos de calculo del coeficiente de difusion, se han utilizado una serie de membranas cuya identificacion y espesor se muestra en la Tabla 7.1.

Identificador	d / mm
P-18357	2.22
P-18417	2.60
P-23045	1.00
P-23371	1.30
P-24151	1.70

Tabla 7.1: Valores experimentales del espesor d de las membranas estudiadas.

7.2. Límites de detección

En primer lugar, se debe establecer los límites de detección para poder determinar el coeficiente de difusión de las distintas membranas. Como se puede observar en la figura 6.1, para valores inferiores a $D = 1 \cdot 10^{-13} \text{m}^2/\text{s}$, las curvas descritas por 4.17 son indistinguibles numéricamente. No obstante, para determinar el límite inferior del dispositivo experimental dispuesto en las secciones anteriores, se cierra el contenedor con una tapa metálica de modo que el radón no puede escapar y la disminución en la concentración se debe únicamente a su propio decaimiento pudiendo así determinar la constante de las pérdidas del sistema completo de acuerdo a lo dispuesto en el modelo descrito por [16]. Tras haber tomado distintas medidas, se obtiene una constante de las pérdidas de $\lambda = 0.0076 \pm 0.0004 \text{ h}^{-1}$, con su incertidumbre calculada por desviación estándar de la repetición de tres medidas. Es decir, la curva descrita por el decaimiento cuando se coloca la tapa metálica muestra el límite inferior de detección del sistema, como se muestra en la figura 7.1.

Por otro lado, para el límite superior, a diferencia de lo descrito en la ISO:2018 [16], donde la constante se acepta igual a $1.6 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$, que corresponde a la reducción de la concentración de radón en la cámara a la mitad durante 12 h [17], en este caso, la sensibilidad del dispositivo experimental no permite estudiar muestras cuyo coeficiente de difusión al radón sea superior a $1 \cdot 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$, tal y como se muestra en la figura 7.1. En verde se tiene el límite inferior de detección descrito por el decaimiento con la tapa cerrada y en negro el límite superior.

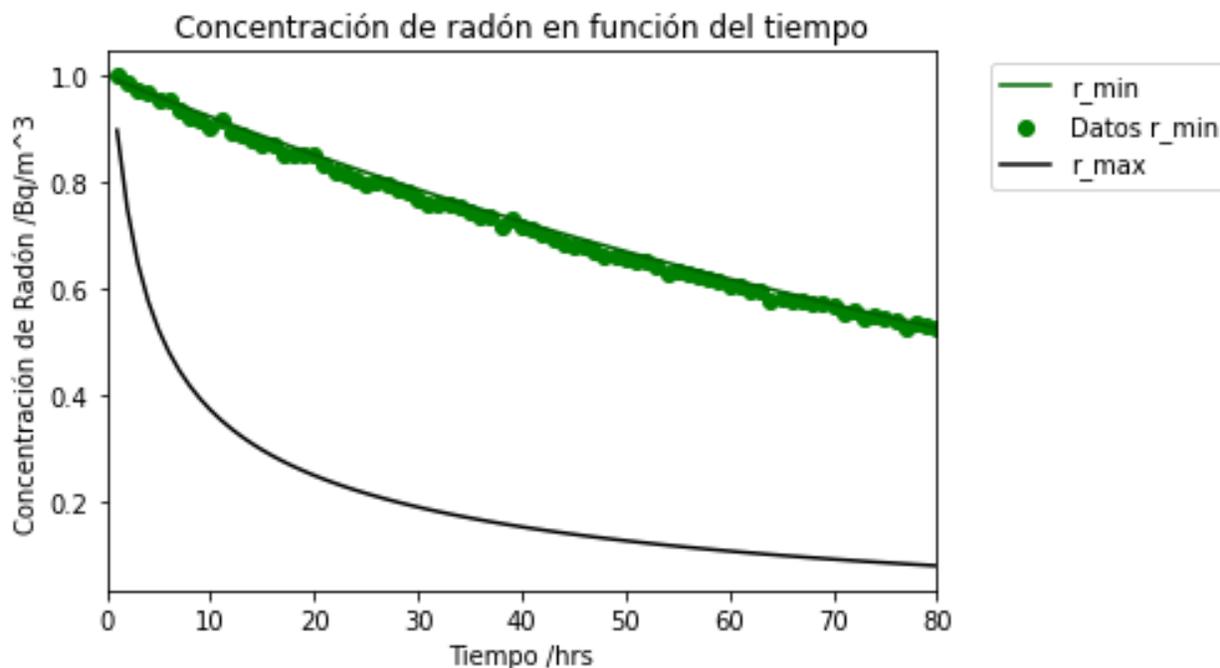


Figura 7.1: Valores experimentales de los límites de detección del dispositivo experimental empleado.

Una vez definidos los límites de detección, se busca estudiar y evaluar la validez del método con membranas cuyo coeficiente de difusión se sitúe entre estos valores. Por tanto, se tomará como válida toda medida que se encuentre entre las curvas descritas por los límites superior e inferior.

7.3. Baja concentración

En una primera parte se ha buscado determinar el coeficiente de difusión de las membranas siguiendo un método que permitiera facilitar la reproducibilidad de las medidas, desarrollando un protocolo con la fuente radiactiva para controlar la actividad de radón en el interior del contenedor y trabajar en torno a valores similares de unos 10 kBq/m³.

Primeramente la fuente es purgada mediante la bomba de aire por una hora, para eliminar cualquier resto de radón que pueda haberse generado mientras la fuente no estaba en uso. Después, la fuente queda cerrada por una hora para la producción de radón descrita por la ecuación (5.3). Y finalmente, el volumen de radón es introducido en el contenedor por diez minutos. Durante estos diez minutos el radio del interior de la fuente sigue decayendo en radón, por lo que estos diez minutos también deben ser tenidos en cuenta para la determinación de la actividad de radón que se introduce en el volumen de la cámara. El intervalo de tiempo en el que se toman las medidas desde el inicio hasta el final del experimento es siempre el mismo, estableciendo un período de 1 hora para cada medida de la concentración en la cámara.

Para determinar el coeficiente de difusión al radón se necesita conocer las curvas de concentración de radón en el interior de la cámara tal y como se muestra a continuación. En azul los datos experimentales junto con la curva descrita por el valor de D que mejor se ajusta a los mismos.

1. P-18357:

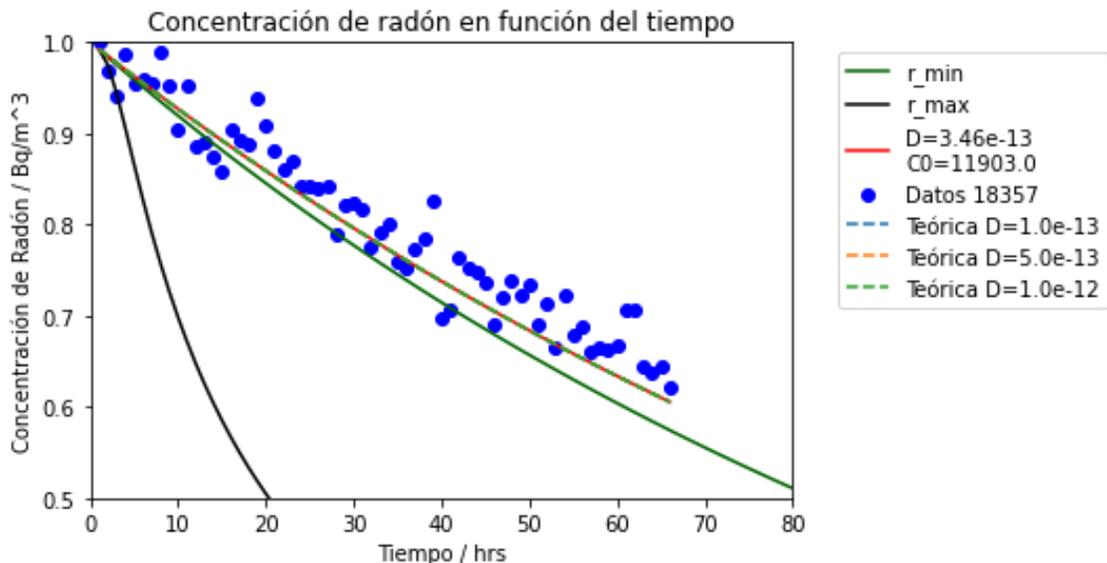


Figura 7.2: Variación de la concentración relativa de radón en el interior de la cámara en función del tiempo para la membrana muestra P-18357.

2. P-18417:

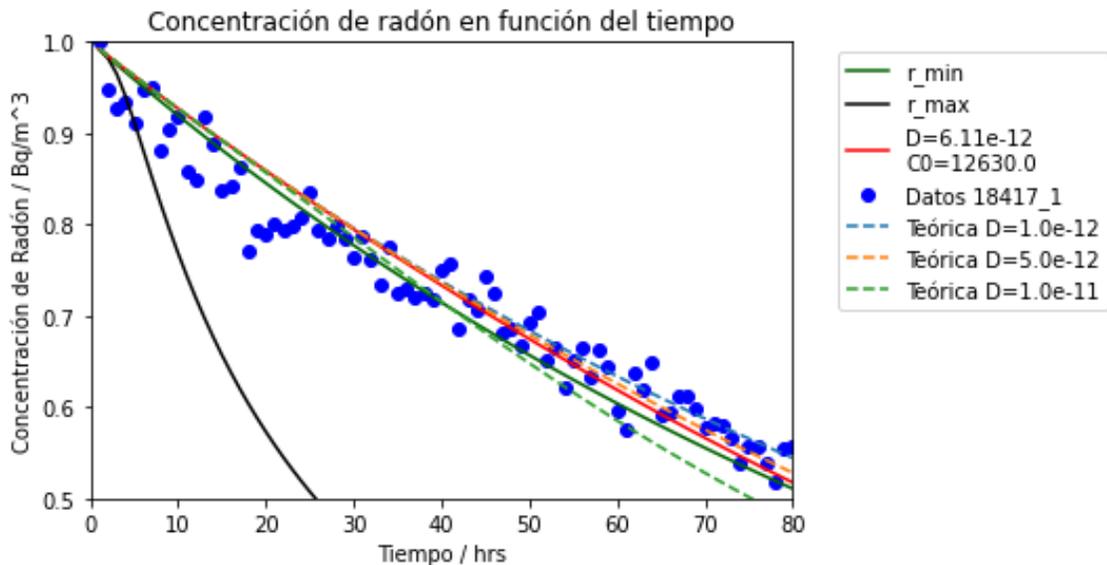


Figura 7.3: Variación de la concentración relativa de radón en el interior de la cámara en función del tiempo para la membrana muestra P-18417.

3. P-23045:

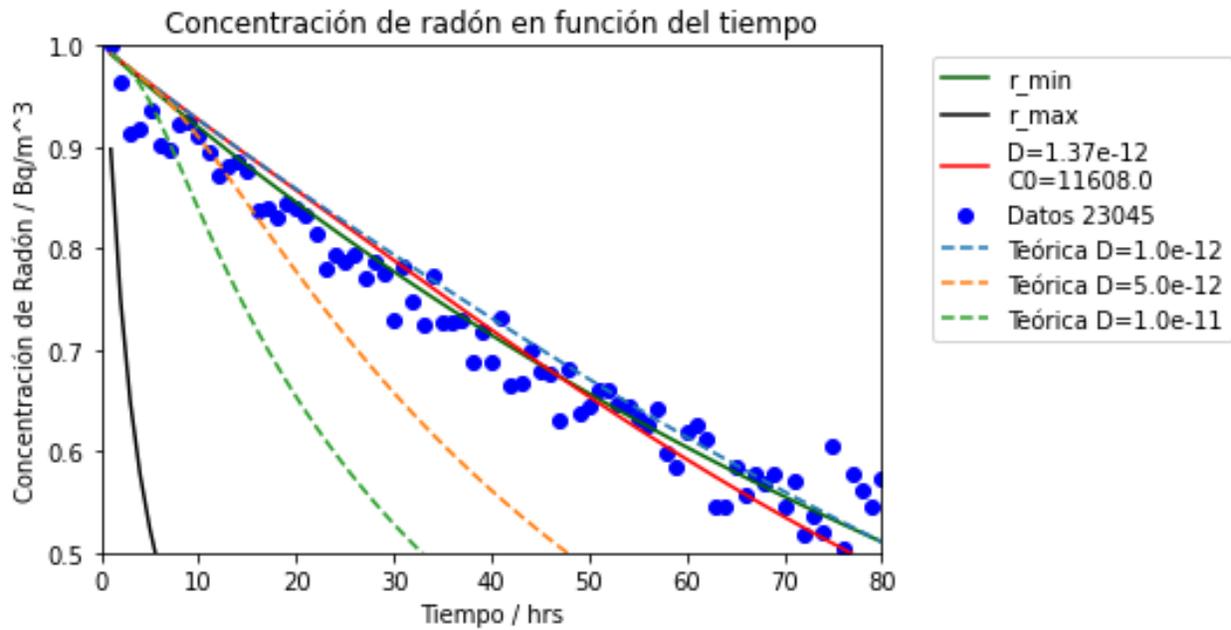


Figura 7.4: Variación de la concentración relativa de radón en el interior de la cámara en función del tiempo para la membrana muestra P-23045.

4. P-24151:

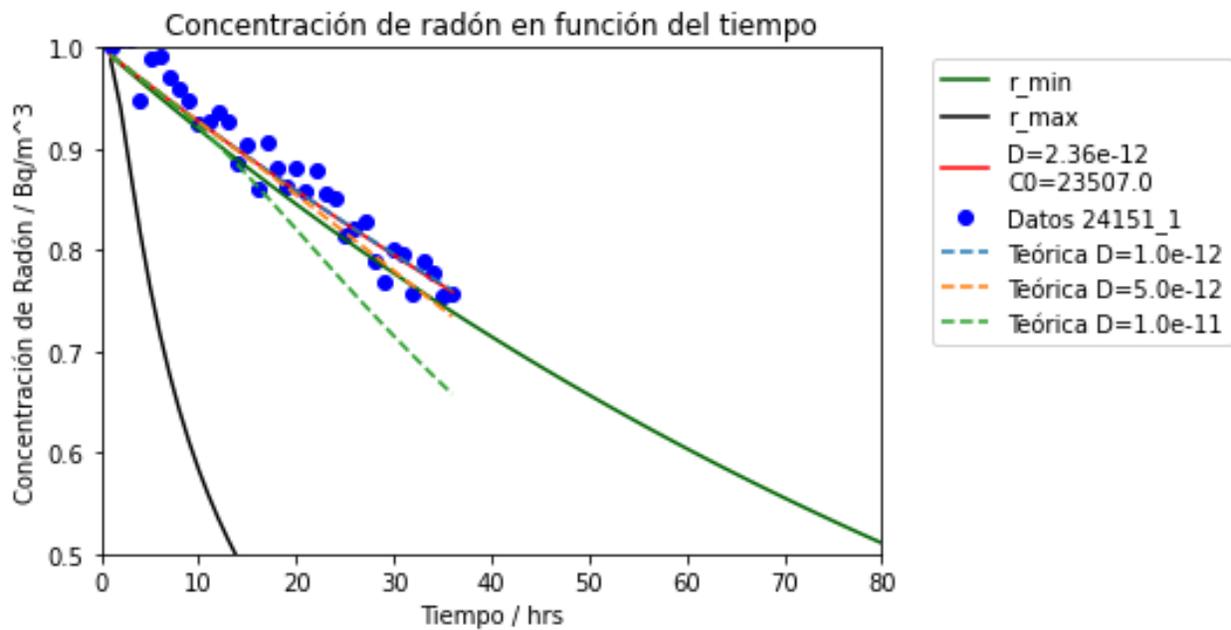


Figura 7.5: Variación de la concentración relativa de radón en el interior de la cámara en función del tiempo para la membrana muestra P-24151.

De acuerdo a lo descrito por el método desarrollado en la ISO-2018 [16], para que los resultados de una medida sean considerados óptimos, deben encontrarse entre los límites de detección dentro de las incertidumbres calculadas tal y como muestra la ecuación 4.11. No obstante, como se observa en las figuras 7.2 y 7.5, la curva descrita por el valor óptimo de D está por encima de la del límite de detección inferior que se corresponde con el sistema cerrado por la tapa metálica.

Por otro lado, aunque en las figuras 7.3 y 7.4, a partir de un cierto período de tiempo las curvas sean diferenciables, la dispersión de los puntos experimentales correspondientes a la concentración de radón medida en el interior de la cámara es demasiado elevada como para considerar que se cumple de forma óptima la condición descrita por la ecuación 4.11, llegando incluso a observarse valores de la concentración por encima de la curva del límite de la tapa metálica.

De este modo se tiene que la baja concentración de radón utilizada inicialmente conduce a una gran dispersión impidiendo llevar a cabo un análisis adecuado, por lo que se optó por incrementar considerablemente la concentración inicial de radón en los siguientes experimentos.

7.4. Alta concentración

En la segunda parte, para aumentar la concentración inicial de radón en la cámara se deja la fuente cerrada más tiempo, del orden de 2-3 días, por lo que la concentración inicial asciende hasta unos 200-300 kBq. No es necesario purgar la fuente ni esperar a que se genere radón, puesto que la duración de las medidas se corresponde con el tiempo necesario para generar esta cantidad de radón.

A continuación se muestran las curvas de la concentración relativa de radón para cada membrana estudiada. La curva roja se corresponde con la descrita por el valor del coeficiente de difusión D que mejor se ajusta a los datos experimentales mostrados en color azul. Por otro lado, las curvas naranja, verde y azul son las descritas por valores fijos de D para el mismo espesor que el de la muestra para visualizar el orden de magnitud gráficamente.

1. P-18357:

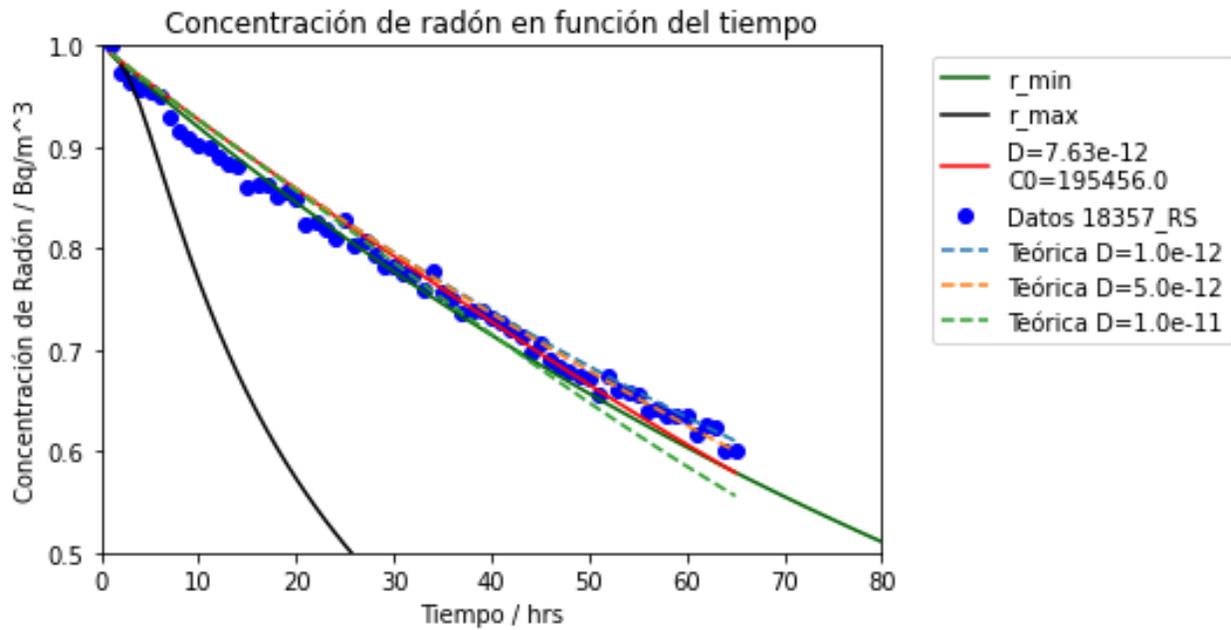


Figura 7.6: Variación de la concentración relativa de radón en el interior de la cámara en función del tiempo para la membrana muestra P-18357.

2. P-18417:

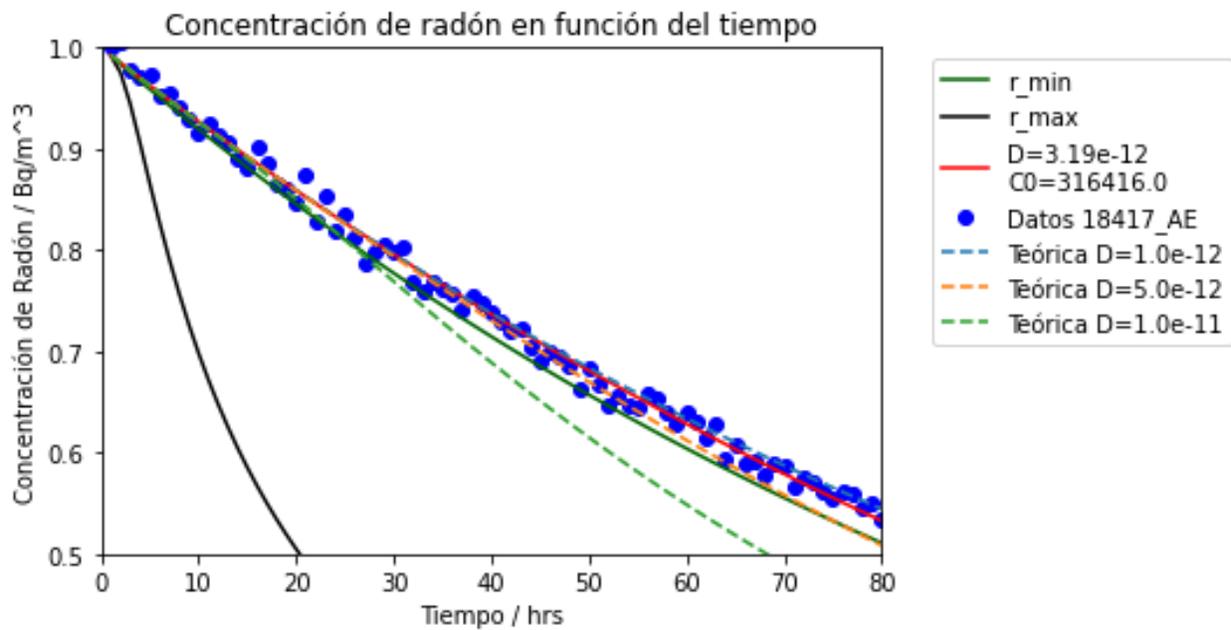


Figura 7.7: Variación de la concentración relativa de radón en el interior de la cámara en función del tiempo para la membrana muestra P-18417.

3. P-23045:

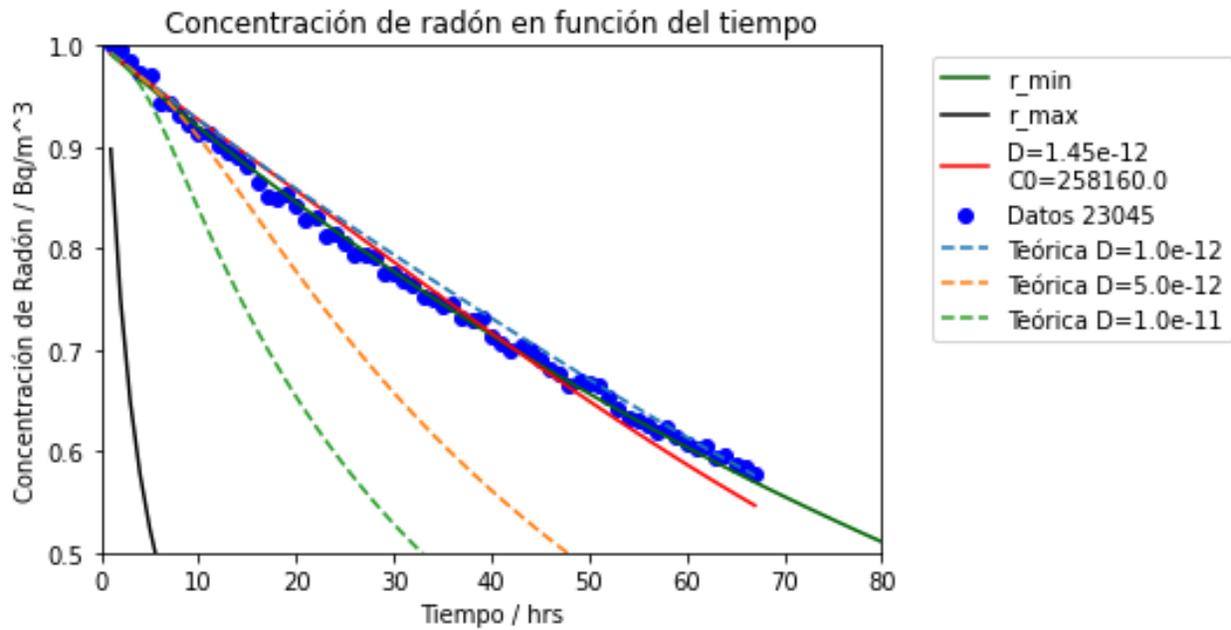


Figura 7.8: Variación de la concentración relativa de radón en el interior de la cámara en función del tiempo para la membrana muestra P-23045.

4. P-23371:

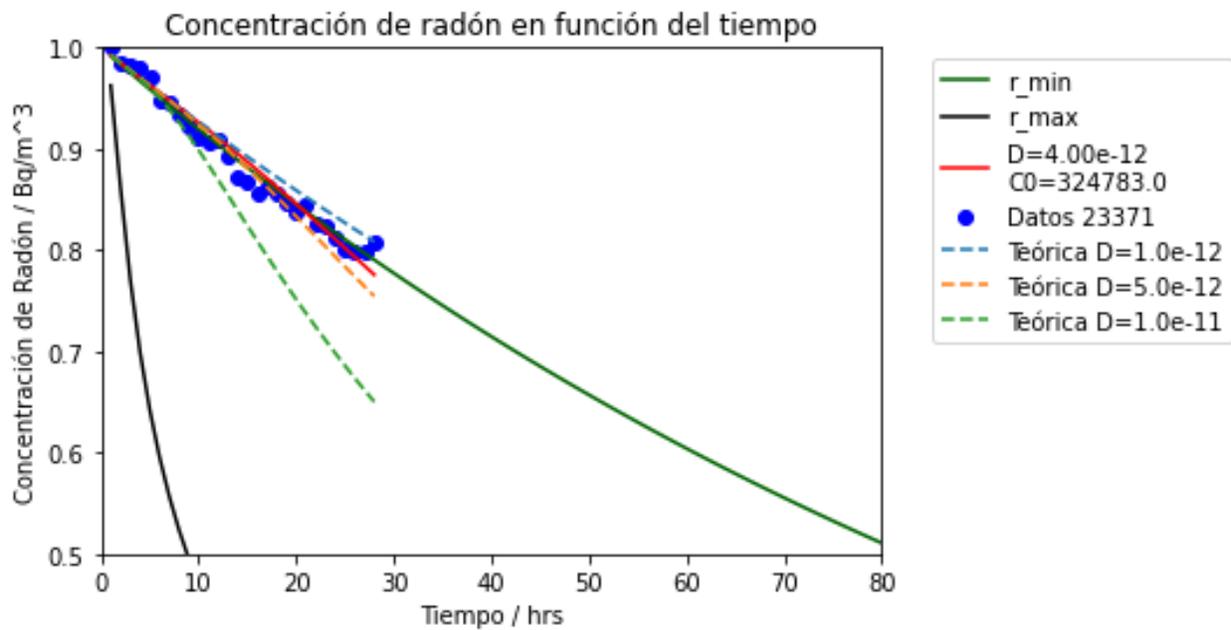


Figura 7.9: Variación de la concentración relativa de radón en el interior de la cámara en función del tiempo para la membrana muestra P-23371.

5. P-24151:

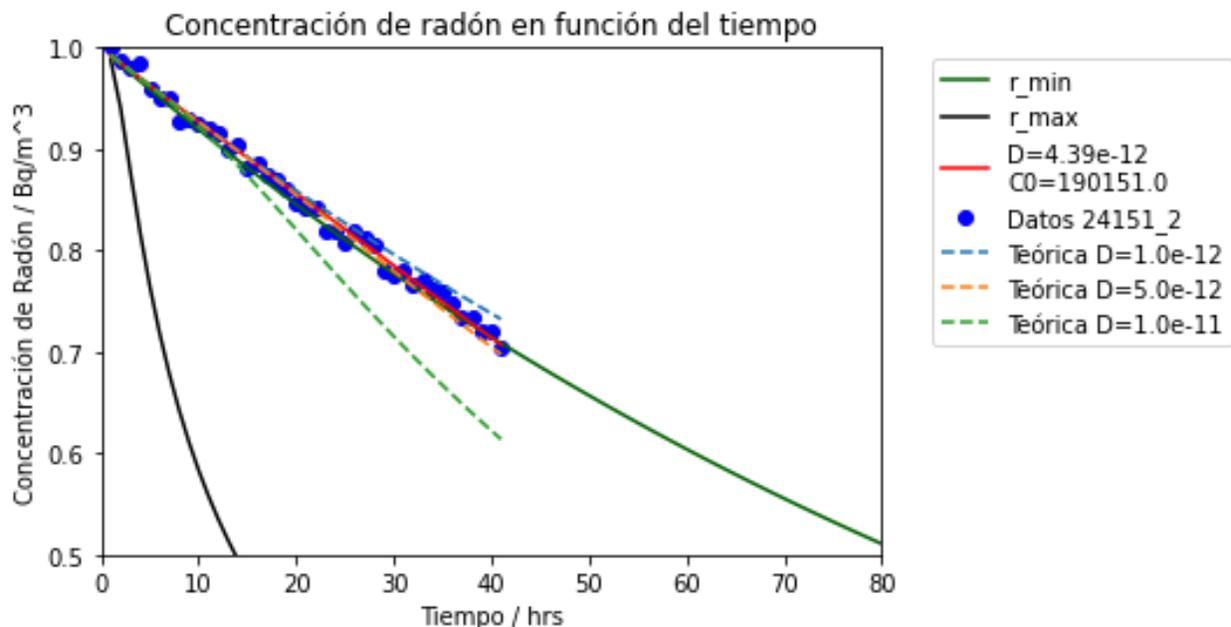


Figura 7.10: Variación de la concentración relativa de radón en el interior de la cámara en función del tiempo para la membrana muestra P-24151.

Como se puede observar en las figuras anteriores, el aumento de la concentración lleva a una dispersión menor en los valores de la concentración. Sin embargo tanto en la figura 7.6 como 7.7 se tiene la misma situación que en los casos previos, los valores de la concentración se sitúan sobre la curva del límite de detección inferior o incluso por encima, por lo que los resultados no son válidos para el análisis de acuerdo a la metodología descrita.

Por otro lado en las membranas estudiadas en las figuras 7.9 y 7.10 las curvas de los ajustes son muy próximas a la descrita por la tapa metálica probablemente debido a que la duración de los experimentos ha sido demasiado corta. Por último, en la figura 7.8 tanto la curva descrita por el valor del coeficiente D obtenido como los datos experimentales de la concentración de radón se encuentran, en su mayoría, entre los límites de detección por lo que, de acuerdo a la metodología de la ISO:2018 [16], se asume que los resultados de las medidas son satisfactorios dentro de los errores experimentales.

7.5. Comparación de resultados

Como se indicó con anterioridad hay dos métodos para estudiar la difusión del radón a través de una membrana, el método de medición de la concentración por una cara [16] y por dos caras [18]. Este último es el implementado en el LaRUC. A continuación se van a mostrar los resultados de los coeficientes de difusión de las diferentes membranas obtenidos por los diferentes métodos planteados.

Identificador	LaRUC/ m ² s	Método una cara / m ² s	F
P-18357	1,10·10 ⁻¹¹	7,60·10 ⁻¹²	0,69
P-18417	4,80·10 ⁻¹²	3,20·10 ⁻¹²	0,67
P-23045	2,60·10 ⁻¹¹	1,50·10 ⁻¹²	0,06
P-23371	2,70·10 ⁻¹²	3,50·10 ⁻¹²	1,30
P-24151	7,80·10 ⁻¹¹	4,40·10 ⁻¹²	0,06

Tabla 7.2: Comparación de los resultados obtenidos por el método de medida de la concentración por una cara con los valores obtenidos por el LaRUC.

En el método de medida de la concentración por una cara, una mayor concentración de actividad de radón puede mejorar la incertidumbre de la medición, pero aún así no es suficiente para el montaje experimental desarrollado. Uno de los factores más influyentes es el volumen de la cámara y la superficie de difusión. Se necesita establecer una relación entre la superficie de difusión y el volumen de la cámara que permita aumentar todo lo posible la contribución de la difusión al decaimiento total frente a la propia desintegración del radón.

En todos los casos los decaimientos de la concentración de radón se encuentran muy cerca del límite de detección pese a aumentar considerablemente la concentración, llevando a que las diferencias en los valores experimentales de los coeficientes de difusión al radón sean bastante notorias. Esta discrepancia que se observa puede estar relacionada con el hecho de que el estudio realizado por el LaRUC, el método presenta mayor sensibilidad. Utilizando una referencia tomada del National Radiation Protection Institute (SURO) de la República Checa [24], basándose en la primera ley de Ficks:

$$\frac{dA}{dt} = \frac{1}{V} \cdot \frac{\partial A}{\partial x} \cdot S \cdot D \quad (7.1)$$

Siendo A la actividad de radón, t el tiempo, V el volumen, x la posición del radón (de 0 a d), S la superficie y D el coeficiente de difusión. En condiciones de difusión estacionaria, esto es, el perfil de concentración en la muestra es lineal y constante en el tiempo, se puede utilizar una simplificación numérica para la concentración de actividad del radón en la cámara [24]:

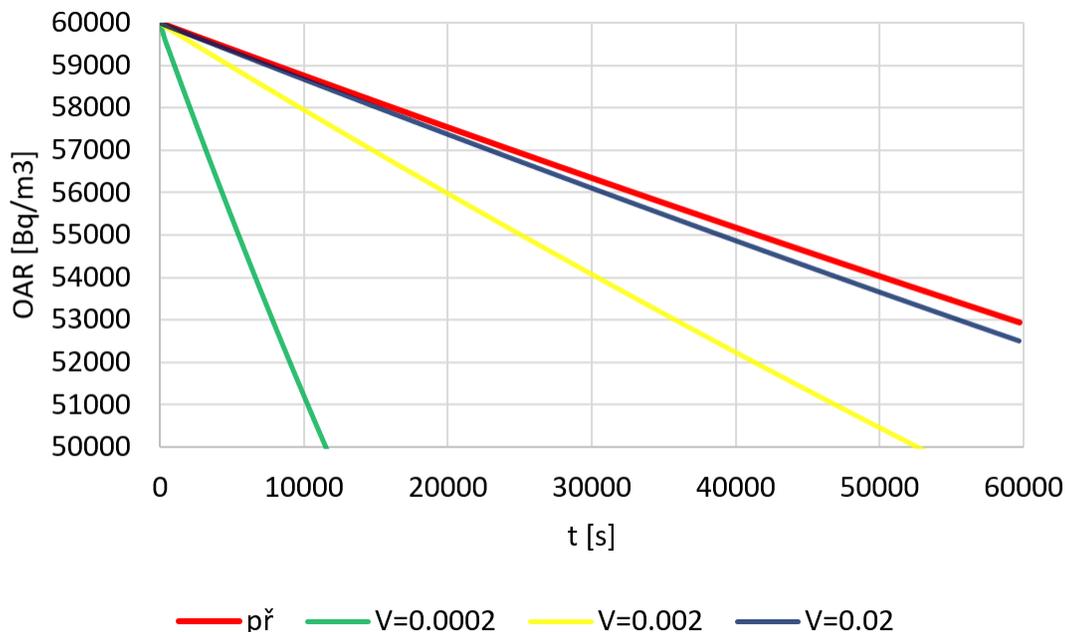


Figura 7.11: Variación de la concentración de radón en el interior en función del volumen de la misma [24]

En la figura 7.11 se representan las soluciones a la ecuación 7.1 que viene dada por la siguiente expresión, que permite estudiar la influencia de la relación entre la superficie de difusión y el volumen de la cámara [24].

$$a_{t+\Delta t} = a_t \cdot e^{-\lambda \Delta t} - \frac{a_t \cdot D \cdot S \cdot \Delta t}{d \cdot V} \quad (7.2)$$

En base a lo observado en la figura 7.11, para un volumen de aproximadamente de 0.02 m^3 como el empleado en el experimento, la sensibilidad de los datos resulta muy pequeña como para obtener resultados válidos con la metodología descrita teniendo en cuenta las propias incertidumbres del montaje experimental como puede ser el detector radon scout que están en torno al 10%, lo que lleva a obtener curvas de decaimiento muy similares en todos los casos a pesar del considerable aumento de la concentración.

8

Conclusiones

Se ha realizado un estudio de la permeabilidad de una serie de membranas impermeables al radón caracterizándolas mediante la determinación de su coeficiente de difusión al radón por el método de medida de la concentración por una cara. Además, se han comparado los resultados con los obtenidos con el método de medida de la concentración por dos caras, concluyendo que los resultados obtenidos no son compatibles con los obtenidos con la metodología empleada por el LaRUC dentro de los errores intrínsecos del montaje experimental; en general los resultados obtenidos no cumplen con los criterios establecidos para la validez del experimento.

Los resultados obtenidos indican que la sensibilidad del método empleado no permite alcanzar la precisión necesaria para la determinación de los coeficientes de difusión al radón de las membranas. La metodología utilizada no es suficientemente precisa para el montaje experimental diseñado, lo que impide obtener resultados válidos.

Se ha identificado la necesidad de optimizar la relación entre la superficie de la muestra y el volumen de la cámara donde se introduce el radón. A pesar de haber incrementado la concentración de radón en el interior del volumen experimental, las curvas de decaimiento del radón debido a la difusión resultaron ser muy similares para todos los experimentos. La similitud en las curvas sugiere que las variaciones en la concentración de radón no se traducen en diferencias significativas en el comportamiento de difusión a través de las membranas. Por otro lado, tras comparar con el método de medida de la concentración por dos caras, desarrollado en el LaRUC, se tienen discrepancias significativas, con valores de diferentes órdenes de magnitud, lo que refuerza la necesidad de reevaluar y ajustar la configuración experimental. Además, las incertidumbres asociadas al equipo de medición, Radon Scout, influyen de manera considerable a la imposibilidad de diferenciar de manera óptima los decaimientos de la concentración de radón. La sensibilidad del método, combinada con estas incertidumbres, resulta insuficiente para realizar un análisis detallado y preciso de los procesos de difusión.

En conclusión, la realización del experimento no ha producido resultados óptimos ni coherentes con el modelo matemático planteado. La combinación de diversos factores han llevado a la obtención de datos experimentales que no cumplen los criterios requeridos por el modelo teórico que permite caracterizar el coeficiente de difusión a través de la medida de la concentración por una sola cara previamente descrito. Sin embargo, aunque el experimento realizado no ha dado lugar a los resultados esperados, los análisis y conclusiones que resultan del procedimiento experimental permiten establecer una base para la mejora y posterior revisión del mismo.

Referencias

- [1] OMS. El radón y sus efectos en la salud. *Organización Mundial de la salud*, 2021.
- [2] Consejo de la Unión Europea. *DIRECTIVA 2013/59/EURATOM DEL CONSEJO de 5 de diciembre de 2013*, 2013.
- [3] Ministerio de Fomento. *Código Técnico de la Edificación. Documento Básico HS. HS 6 Protección frente a la exposición al radón*, 2019.
- [4] Organismo Internacional de Energía Atómica. *Nociones básicas sobre la radiación*, 2020.
- [5] Consejo de Seguridad Nuclear. Pedro Justo Dorado Dellmans. *Protección Radiológica*, 2012.
- [6] J.Catalá. *Física*. Cometa S.A, 1979.
- [7] Consejo de Seguridad Nuclear. Dosis de radiación /csn. Technical report, Consejo de Seguridad Nuclear, 2010.
- [8] Luis Santiago Quindós Poncela; Carlos Sainz Fernández; Luis Quindós López; Ismael Fuente Merino y José Luis Arteché. El gas radón como contaminante atmosférico. *19ª Jornada técnica SESA sobre radiaciones ionizantes y salud*, 2010.
- [9] Ministerio de transportes movilidad y agenda urbana. Ministerio de ciencia e innovación. Guía de rehabilitación frente al radón.
- [10] Puerto Ramírez; Carlos Morón; Alfonso García; Enrique Correa. Estudio de las concentraciones y mecanismos de desplazamiento de radón y descendientes en recintos cerrados. *Congreso de Innovación Tecnológica en la Edificación CITE*, 2011.
- [11] Relaciones con las Cortes y Memoria Democrática. Ministerio de la Presidencia. *Real Decreto 1029/2022, de 20 de diciembre. Reglamento sobre protección de la salud contra los riesgos derivados de la exposición a las radiaciones ionizantes.*, 2022.
- [12] Ministerio de Sanidad. *Plan Nacional contra el Radón*, 2024.
- [13] Consejo de Seguridad Nuclear. Mapa de zonificación por municipio de radón.
- [14] Marta García-Talavera San Miguel Francisco Javier López Acevedo. *Cartografía del potencial de radón de España*. Consejo de Seguridad Nuclear, 2019.

-
- [15] Ministerio de Fomento. Mapa de radón en españa; código técnico de la edificación. documento básico hs. hs 6 protección frente a la exposición al radón, 2019.
- [16] Asociación Española de Normalización. *Medición de la radiactividad en el ambiente. Aire: radón-222. Parte12: Determinación del coeficiente de difusión en materiales impermeables: método de medición de la concentración de actividad de un lado de la membrana (ISO/TS 11665-12:2018)*, 2021.
- [17] Konstantin Kovler Andrey Tsapalov. Revisiting the concept for evaluation of radon protective properties of building insulation materials. *ELSEVIER*, 2016.
- [18] Association Française de Normalisation. *Measurement of radioactivity in the environment — Air: radon 222 — Part 13: Determination of the diffusion coefficient in waterproof materials : membrane two-sides activity concentration measurement method*, 2016.
- [19] Botond Papp. Methods for measuring radon diffusion parameter of waterproof membranes. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2014.
- [20] Milto Abramowitz; Irene A. Stegun. *Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs and Mathematical Tables*. Department of Commerce United States of America, 1972.
- [21] Calibration technologies.Central Canada Region. Manual pylon rn source.
- [22] SARAD Enviromental Instruments. *Theory of operation Radon Scout. Measuring Principals – Decay Statistics – Test Planning*, 2007.
- [23] SARAD Enviromental Instruments. *Handbuch. Radon Scout. Radon monitor for indoor measurements*, 2021.
- [24] Radim.n. Membrane one side activity concentration measurement method. Technical report, National Radiation Protection Institute (SURO), 2024.

Anexo: Código

```
import numpy as np
from scipy.optimize import curve_fit
import matplotlib.pyplot as plt
import os

# TAPA METÁLICA -- > PÉRDIDAS DEL SISTEMA
C0_tapa = 266002 # CONCENTRACIÓN INICIAL en Bq/m**3
lambda_min = 0.0076 # CONSTANTE DECAIMIENTO EN h**-1
s_lambda_min = 0.0004

# DATOS DE LAS PERDIDAS DEL SISTEMA -- > LÍMITE INFERIOR
C_perdidas = np.loadtxt('tapa.txt') / C0_tapa
# VALORES DEL TIEMPO
t_perdidas = np.arange(1, len(C_perdidas) + 1)
# FUNCIÓN DE LAS PÉRDIDAS DEL SISTEMA -- > r_min
def r_min(t_perdidas):
    c_min = np.exp(-(lambda_min + 2 * s_lambda_min) * t_perdidas)
    return c_min

# DIBUJAR LA CURVA r_min
valores_r_min = r_min(t_perdidas)
plt.plot(t_perdidas, valores_r_min, label='r_min', color='darkgreen')

# CONSTANTES ECUACIÓN DE DECAIMIENTO
a1, a2, a3, a4 = 0.278393, 0.230389, 0.000972, 0.078108
lambda_ = 0.0076 # Constante de decaimiento en h**-1

# Función para calcular la concentración teórica
def rn_calculated(t_datos, D, d):
    D *= 3600 # D en m**2/h
    u = d / (np.sqrt(2 * D * t_datos))
    erf_custom = (1 - (1 + a1 * u + a2 * u**2 + a3 * u**3 + a4 * u**4) ** -4)
    C_Rn_predic = erf_custom * np.exp(-lambda_ * t_datos)
    return C_Rn_predic

# Función para ajustar los datos experimentales y encontrar el valor óptimo de D
```

```

def encontrar_D_optimo(t_datos, C_datos, d):
def r(t, D):
return rn_calculated(t, D, d)

D, pcov = curve_fit(r, t_datos, C_datos, p0=1e-10, bounds=(1e-14, 1e-10))
pstd = np.sqrt(np.diag(pcov)) / len(C_datos)
print(f'D = D[0]:.8e ± pstd[0]:.8e')
return D[0]

# Función para dibujar las curvas
def dibujar_curvas(archivo_datos, color_linea, color_puntos):
C_datos = np.loadtxt(archivo_datos)
C0 = C_datos[0] # Concentración inicial
C_datos = C_datos / C0
t_datos = np.arange(1, len(C_datos) + 1)
print(f'Concentración inicial (C0): C0')

# Extraer el nombre de la membrana del archivo
nombre_membrana = os.path.basename(archivo_datos).split('.')[0]

# Encontrar el D óptimo
D_optimo = encontrar_D_optimo(t_datos, C_datos, d)

# Dibujar la curva teórica con el D óptimo
curva_optima = rn_calculated(t_datos, D_optimo, d)
plt.plot(t_datos, curva_optima, label=f'D=D_optimo:.2e n C0=C0', color=color_linea)
plt.scatter(t_datos, C_datos, label=f'Datos nombre_membrana', color=color_puntos)

# Dibujar curvas teóricas cercanas a un orden de magnitud de D encontrado
D_lower = 10**np.floor(np.log10(D_optimo))
D_mid = D_lower * 5
D_upper = 10**np.ceil(np.log10(D_optimo))
D_values = [D_lower, D_mid, D_upper]

for D_val in D_values:
curva_teorica = rn_calculated(t_datos, D_val, d)
plt.plot(t_datos, curva_teorica, '-', label=f'Teórica D=D_val:.1e')

# Diseño del plot
def mostrar_grafico():
plt.xlabel('Tiempo / hrs')
plt.ylabel('Concentración de Radón / Bq/m³')
plt.title('Concentración de radón en función del tiempo')
plt.xlim(0, 80)
plt.ylim(0.5, 1)

```

```
plt.legend(bbox_to_anchor=(1.05, 1), loc='upper left')
plt.show()

# Solicitar archivo de datos y espesor
archivo_datos = input("Introduce el nombre del archivo de datos de la membrana: ")
d = float(input("Introduce el espesor de la lámina en m: "))

# LÍMITE SUPERIOR
t_max = np.linspace(1, 80, 80)

# DIBUJAR LA CURVA r_max
valores_r_max = rn_calculated(t_max, 1e-10, d) # Se usa el valor de d ingresado
plt.plot(t_max, valores_r_max, label='r_max', color='black')

# Analizar la membrana y mostrar los resultados
dibujar_curvas(archivo_datos, d, 'red', 'blue')
mostrar_grafico()
```