

T.S-205

UNIVERSIDAD DE SEVILLA

FACULTAD DE FISICA

APLICACIONES AMBIENTALES DE LA ESPECTROMETRIA GAMMA DE BAJAS ENERGIAS



UNIVERSIDAD DE SEVILLA



600066076

1 29218333

Memoria presentada por
Antonio Martínez Lobo
para optar al grado de
Doctor en Ciencias Físicas

Directores: Manuel García León
Profesor Titular de Física
Atómica, Molecular y Nuclear
Antonio Travesí Jiménez
Doctor en Ciencias Químicas
Instituto PRYMA, CIEMAT



A Marimar y
a mis padres

Este trabajo se ha desarrollado en la Unidad de Control Radiológico Externo del Instituto de Protección Radiológica y Medio Ambiente (PRYMA) del Centro de Investigaciones Energéticas, Medio Ambientales y Tecnológicas (CIEMAT) y en el Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear de la Facultad de Física de la Universidad de Sevilla bajo la dirección CONJUNTA de los doctores D. Antonio Travesí Jiménez y D. Manuel García León.

AGRADECIMIENTOS

En estos momentos en los que una etapa importante de mi vida científica llega a su fin me gustaría expresar mi agradecimiento a todas las personas que me ayudaron e hicieron posible la realización de esta tesis doctoral:

- Al Profesor Gonzalo Madurga, director del Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear, que fue quien me introdujo en el campo de la investigación al concluir los estudios de licenciatura.

- A Manuel García León, director de mi tesina de licenciatura y ahora codirector de esta tesis doctoral, por sus continuas enseñanzas y por haberme infundido confianza durante todo el desarrollo de mi trabajo científico.

- A Rafael García Tenorio y a los demás compañeros del Departamento, por las amenas discusiones, constante estímulo y por el excelente ambiente de camaradería.

- Al staff del Instituto PRYMA y a su director, Francisco Mingot, por haber puesto a mi disposición los medios materiales para la realización de esta memoria.

- A Antonio Travesí Jimenez, codirector de esta tesis doctoral, que me ofreció sus amplios conocimientos y experiencia científica para la supervisión de este trabajo.

- A Juan Palomares López, jefe de los Laboratorios de Análisis y Medida del Instituto PRYMA, de cuya mano me introduje en el campo de la espectrometría gamma, por sus valiosas enseñanzas y por su apoyo.

- A David Cancio, jefe de la Unidad Operativa de Control Radiológico Externo, por las muchas discusiones de los resultados obtenidos, y por su confianza.

- A Lourdes Romero por su cooperación en muchas fases del desarrollo de esta memoria, en especial la elaboración del programa LULEPS, la datación de sedimentos marinos y los resultados de ^{241}Am por espectrometría alfa.

- A mis antiguos compañeros, y ahora doctores, Josep María Martí y Josep Lluís Font, por su amistad y confianza, y por tantos consejos y discusiones en el periodo que vivimos bajo el mismo techo.

- A los compañeros de la Unidad, y muy en especial a Francisco Santos, por su inestimable ayuda durante todo el tiempo que he permanecido en el CIEMAT, y a Aurelio Esquivel, por la meticulosa preparación de las muestras.

- A Marisa Chapel, antigua compañera del CIEMAT, por su amistad y por sus valiosos consejos.

- A Milagros Amaro, por sus útiles consejos informáticos.

- A Carlos Pérez y Angel Blanco, de Anadig Ingenieros, por su importante ayuda técnica.

- A Catalina Gascó, que me facilitó los datos de $^{239+240}\text{Pu}$ del núcleo de sedimentos PA-31.

Lamentablemente ninguna lista puede ser completa, y espero que sepan disculparme aquellos que haya podido omitir. Sinceramente, muchas gracias a todos.

INDICE

1. <u>INTRODUCCION</u>	1
2. <u>PROBLEMATICA Y EVOLUCION DE LA ESPECTROMETRIA GAMMA DE MUESTRAS AMBIENTALES</u>	5
2.1 <u>TECNICAS DE RECUENTO DE BAJO NIVEL</u>	5
2.1.1 <u>Eficiencia</u>	8
2.1.2 <u>Fondo</u>	10
2.1.3 <u>Interferencias</u>	12
2.2 <u>ESPECTROMETRIA GAMMA</u>	13
2.2.1 <u>Desarrollo histórico</u>	15
2.2.2 <u>Espectrometría gamma de alta resolución</u>	20
2.2.2.1 <u>Eficiencia</u>	20
2.2.2.2 <u>Fondos</u>	22
2.2.2.3 <u>Resolución</u>	28
2.2.2.4 <u>Límites de detección</u>	29
2.2.3 <u>Ventajas de la espectrometría gamma con detectores de germanio</u>	36
2.3 <u>ESPECTROMETRIA GAMMA DE FOTONES DE BAJAS ENERGIAS</u> ..	41
2.3.1 <u>Limitaciones de los detectores convencionales en bajas energías</u>	43
2.3.1.1 <u>Aplicaciones de las medidas de fotones de baja energía</u>	44
2.3.1.2 <u>Problemática de la detección de fotones blandos</u>	45

3.1.4.3	Preparación de los patrones y cálculo de las eficiencias	80
3.1.4.4	Ajuste de la función eficiencia energía	81
3.1.4.5	Influencia de la autoabsorción	85
3.1.5	<u>Fondo del sistema LEPS</u>	86
3.2	<u>DETECTOR ReGe</u>	93
3.2.1	<u>Descripción del detector ReGe</u>	93
3.2.2	<u>Calibración en energías</u>	95
3.2.2.1	Selección de la ganancia de conversión del ADC	95
3.2.2.2	Relación energía-canal	96
3.2.2.3	Resolución en energías	98
3.2.3	<u>Calibración en eficiencias</u>	100
3.2.3.1	Elección de los radionúclidos	100
3.2.3.2	Geometrías de medida	100
3.2.3.3	Cálculo de la eficiencia y ajuste de la función eficiencia-energía	103
3.2.4	<u>Fondo del detector ReGe</u>	106
3.3	<u>COMPARACION ENTRE LOS DOS DETECTORES</u>	114
3.3.1	<u>Resolución en energías</u>	114
3.3.2	<u>Fondo de los detectores</u>	115
3.3.3	<u>Eficiencia y sensibilidad</u>	116
3.4	<u>ESTUDIO DE LA INFLUENCIA DE LA AUTOABSORCION EN LAS CURVAS DE EFICIENCIAS</u>	119
3.4.1	<u>Revisión bibliográfica</u>	119

3.4.1.1	Enfoques teóricos	119
3.4.1.2	Enfoque experimentales	121
3.4.2	<u>Método de transmisión</u>	122
3.4.3	<u>Ensayos con muestras de distinta composición y densidad</u>	126
3.5	<u>VALIDACION DE LAS CALIBRACIONES</u>	139
4.	<u>APLICACIONES EXPERIMENTALES</u>	144
4.1	<u>DATAACION DE SEDIMENTOS MARINOS MEDIANTE Pb-210 Y Cs-137</u>	144
4.1.1	<u>Método de datación por Cs-137</u>	146
4.1.2	<u>Método de datación por Pb-210</u>	148
4.1.3	<u>Modelos matemáticos para la datación con Pb-210</u>	152
4.1.3.1	Modelo C.I.C.	153
4.1.3.2	Modelo C.F.:C.S.	154
4.1.3.3	Modelo C.R.S.	155
4.1.4	<u>Muestras medidas</u>	157
4.1.4.1	Muestreo	159
4.1.4.2	Resultados y discusión del núcleo PA-31	160
4.1.4.3	Resultados y discusión del núcleo PA-16	171
4.1.5	<u>Discusión</u>	181

4.2	<u>ANÁLISIS ESPECTROMÉTRICO DE MUESTRAS PROCEDENTES DE INSTALACIONES DE TRATAMIENTO DE MINERALES DE URANIO</u>	185
4.2.1	<u>Características de la zona de muestreo</u>	186
4.2.1.1	Descripción y funcionamiento de la FUA	186
4.2.1.2	Características e importancia de los estériles	189
4.2.2	<u>Determinación directa de Ra-226 por espectrometría gamma</u>	193
4.2.2.1	Interferencia del U-235	195
4.2.2.2	Cálculo de la actividad de Ra-226	198
4.2.2.3	Sensibilidad del método	201
4.2.2.4	Validación del método	202
4.2.2.5	Discusión	204
4.2.3	<u>Análisis espectrométrico de estériles</u>	206
4.2.3.1	Distribución de actividades según granulometría	206
4.2.3.2	Distribución de actividades con la profundidad	214
4.2.3.3	Discusión	218
4.2.4	<u>Análisis de tierras de los alrededores de la FUA</u>	221
4.2.4.1	Descripción de las muestras	221
4.2.4.2	Comparación de las actividades de Ra-226	221
4.2.4.3	Resultados obtenidos	223

5. <u>CONCLUSIONES</u>	228
6. <u>BIBLIOGRAFIA</u>	232
<u>APENDICES</u>	248
A1. <u>PROGRAMAS DE ANALISIS DE ESPECTROS</u>	248
A2. <u>CERTIFICADOS DE LAS SOLUCIONES</u> <u>Y MUESTRAS PATRONES</u>	254

1.INTRODUCCION.

El hombre no ha tomado contacto con las radiaciones nucleares, de manera consciente, hasta el principio de este siglo. Desde siempre en la historia del universo, y por tanto del hombre, las radiaciones nucleares han estado presentes. La carencia de un sentido natural para la percepción de dichas radiaciones ha impedido al hombre su conocimiento hasta este mismo siglo.

Durante las primeras décadas del siglo XX el estudio de las radiaciones nucleares era objeto de la investigación de vanguardia de la Física, estando su conocimiento lejos de los profanos. La posibilidad de utilizar la energía nuclear para fines bélicos supone un impulso muy importante para estas investigaciones, que tienen un primer punto y aparte con la detonación de las bombas nucleares sobre Hiroshima y Nagasaki, en 1945. Es en este momento cuando la humanidad tiene su primer, y trágico, contacto con la energía y las radiaciones nucleares. Desde entonces, una aureola de temor y desconfianza ha acompañado al desarrollo de la ciencia nuclear.

Con la llegada de la paz se hace posible el desarrollo de otras aplicaciones de la energía nuclear, acompañando desgraciadamente a las de carácter bélico. Es así como en los últimos cuarenta años se ha podido observar la utilización de la energía nuclear y sus radiaciones en un gran número de aplicaciones civiles: desde la obtención de energía hasta la Medicina Nuclear.

La creciente utilización de la energía y las radiaciones nucleares, junto con la comprensión más profunda de los efectos de las radiaciones sobre los organismos vivos, hicieron necesario el desarrollo de la protección radiológica. Como consecuencia del empleo de materiales radiactivos en las diversas aplicaciones, especialmente durante el ciclo del

combustible nuclear, son liberadas al medio ambiente cantidades significativas de diversos radionúclidos. Un control eficaz de estos vertidos es fundamental para minimizar los riesgos a la población provocados por los mismos.

En el caso de los vertidos o desechos procedentes de las diversas instalaciones nucleares y radiactivas, la caracterización (identificación y cuantificación) del término fuente es el primer paso a seguir a la hora de efectuar los cálculos de dosis y los análisis de seguridad y riesgo para la población.

La medida y determinación de las concentraciones de radionúclidos no sólo tiene aplicaciones en la protección radiológica, sino que es una valiosa herramienta en muchos campos de la ciencia y de la tecnología. Buena muestra de ello puede ser el elevado número de técnicas analíticas de determinación de actividades que aparecen en la literatura, la mejora continua en los diferentes sistemas de detección de las radiaciones y la búsqueda de nuevas aplicaciones en los más diversos campos. Es dentro de este contexto donde hay que enmarcar la presente memoria.

La determinación de radionúclidos en muestras de baja actividad constituye, por sus especiales características y sus numerosas aplicaciones prácticas, un campo relativamente independiente de la ciencia nuclear. La espectrometría gamma de alta resolución, con casi treinta años de existencia, es la técnica analítica de más amplia utilización.

El objetivo de esta memoria es la puesta a punto y calibración de dos sistemas de espectrometría gamma, aptos para la medida de fotones de bajas energías, y su aplicación a dos problemas concretos de radiactividad ambiental.

El capítulo dos se inicia con una introducción a la problemática de las medidas radiactivas ambientales.

Posteriormente se describe someramente la espectrometría gamma, enumerándose las ventajas que presenta frente a otras técnicas analíticas de determinación de radionúclidos. El final de este capítulo introductorio está dedicado a la aplicación de la espectrometría gamma a fotones de bajas energías. En esta sección se estudian las limitaciones de los detectores convencionales para la medida de fotones con energías inferiores a 100 keV y se presenta el desarrollo histórico de los detectores específicos para fotones de baja energía.

El capítulo tres está dedicado a la puesta a punto y calibración de los dos sistemas de espectrometría gamma de bajas energías utilizados en este trabajo: el sistema LEPS, formado por dos detectores de germanio tipo plano, y el detector ReGe, de germanio tipo n. Después de la calibración de los detectores se presenta una sección donde se comparan las diferentes características de los mismos (intervalos energéticos de aplicación, fondos, resolución en energías, eficiencias y sensibilidad). La medida de fotones de bajas energías requiere la consideración de los efectos de autoabsorción; los métodos que se han seguido para esta corrección se detallan a continuación. Finalmente, se muestran una serie de medidas de muestras de actividades conocidas que sirven para validar tanto la puesta a punto como la calibración de los sistemas detectores.

Las aplicaciones experimentales realizadas con los dos detectores que se presentan en esta memoria se incluyen en el capítulo cuatro. La primera de estas aplicaciones es la datación de sedimentos marinos mediante ^{210}Pb y ^{137}Cs . Para ello se describen las técnicas de datación basadas en estos radionúclidos antes de describir las muestras medidas. Estas muestras son dos núcleos de sedimentos, y fueron recogidas en el litoral mediterráneo, frente a las costas de Palomares.

El segundo grupo de muestras medidas está constituido por tierras y estériles de minerales de uranio, y fueron recogidas en las instalaciones de la antigua fábrica de uranio

de Andújar, Jaén, y en sus cercanías. Antes del análisis de los resultados obtenidos se hace un pequeño estudio de la importancia radiológica de los residuos de la fabricación de concentrados de uranio, y se presenta un método original de determinación directa de ^{226}Ra por espectrometría gamma.

En el capítulo cinco se presentan las conclusiones del presente trabajo, haciéndose especial hincapié en aquellas aportaciones originales.

Finalmente, se presenta la bibliografía utilizada para la realización y redacción de la memoria.

Se incluyen como apéndices de esta memoria una breve descripción de los programas de análisis de espectros utilizados y copias de los certificados de los patrones de calibración y verificación.

2. PROBLEMATICA Y EVOLUCION DE LA ESPECTROMETRIA GAMMA DE MUESTRAS AMBIENTALES.

Desde la última década del siglo XIX en que se descubre la radiactividad, la investigación experimental en el campo de la Física Nuclear ha estado marcada por el desarrollo y perfeccionamiento de sistemas detectores para las diferentes radiaciones de origen nuclear. La necesidad de medir adecuadamente las radiaciones nucleares se ve acentuada con el desarrollo de la energía nuclear a partir de los años 50. Dada la gran cantidad de aplicaciones de la energía y de las radiaciones nucleares, la gama de técnicas de medida y determinación de los radionúclidos y de sus radiaciones es muy amplia.

Una de las situaciones experimentales más comunes es aquella en la que las radiaciones que se desea medir son emitidas con bajas intensidades, ya sea por la baja actividad específica de las muestras, por tratarse de sucesos con una probabilidad pequeña de ocurrencia o por la presencia de otros eventos que interfieren en la medida. Las peculiaridades de esta circunstancia hace que se agrupen estas medidas dentro de las técnicas de recuento de bajo nivel (Low Level Counting Techniques) <OESCHGER-75>.

2.1 TECNICAS DE RECUESTO DE BAJO NIVEL.

Uno de los objetos de las técnicas de recuento de bajo nivel es la determinación de radionúclidos presentes en pequeñas concentraciones. Las aplicaciones de las medidas de bajas actividades son muy numerosas y diversas: desde estudios de procesos poco frecuentes en Física Nuclear, como la doble

desintegración beta del ^{76}Ge , hasta ensayos con trazadores radiactivos en Biología y Medicina. Sin embargo, las aplicaciones más importantes y numerosas de las medidas de bajas actividades se engloban en el estudio de la presencia y evolución de elementos radiactivos en la naturaleza; dentro de este tema, la medida de radioisótopos naturales tiene innumerables aplicaciones a distintas ramas de la ciencia <OESCHGER-75>.

Las primeras medidas de radiactividad natural de bajo nivel fueron las realizadas por Libby y colaboradores, en los últimos años de la década de los 40, enmarcadas en el estudio del ^{14}C en la naturaleza y su utilización para fines cronológicos. Recordemos que estos trabajos le valieron a Libby el premio Nobel de Química del año 1960.

La generalización del interés por las medidas de bajas actividades surge en los años 50, como consecuencia del auge por la evaluación de la contaminación radiactiva de bajo nivel en el medio ambiente, debida a los ensayos nucleares y al creciente uso de radioisótopos. Buena muestra de ello es la publicación de un report sobre la radiactividad en la biosfera en 1958 por UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation) y la creación de un grupo de trabajo sobre radiactividad de bajo nivel en materiales y su relación con las medidas radiológicas dentro del ICRU (International Commission on Radiation Units and Measurements), que publica su primer informe en 1962 <HUTCHINSON-73>.

Dentro del campo de las medidas de radioactividad natural, las medidas de bajas actividades son una eficaz herramienta para estudios sobre rayos cósmicos, fenómenos atmosféricos, Oceanografía, Hidrología, datación en Geología y Paleontología, control radiológico, etc.

Con la creciente utilización de las medidas de bajas actividades surgieron diferentes conceptos para valorar y comparar los métodos de medida y determinación alternativos. De

esta manera, en el segundo report de la ICRU dedicado a las medidas de bajas actividades, se mencionan los conceptos de "mínimo tiempo combinado", "actividad equivalente a fondo", "mínima actividad detectable" y "figura de mérito" <ICRU-72>. De estos conceptos los que han tenido una mayor aceptación son los dos últimos. En este trabajo no haremos un estudio pormenorizado de estos parámetros, por quedar al margen del tema central. Podemos reseñar por el momento que la mínima actividad detectable establece, a priori, la mínima actividad de un radionúclido que debe estar presente en la muestra para que sea detectada con un nivel de confianza estadística determinado, para unas condiciones de recuento particulares <CURRIE-68>. Es el parámetro más utilizado para la comparación de diferentes técnicas de bajo nivel. La formulación de los límites de detección será desarrollada para el caso particular de la espectrometría gamma en el siguiente apartado.

En cuanto a la figura de mérito, FOM (figure of merit), de un método de determinación se define, en general, como la inversa del tiempo de medida conjunto de la muestra y del fondo, T, necesario para alcanzar una precisión especificada en la tasa de recuento neto de la muestra. Las técnicas analíticas más apropiadas serán aquellas que presenten un máximo de la FOM, es decir, un mínimo T. La expresión de la figura de mérito es <OESCHGER-75>:

$$FOM = \frac{1}{T} = \epsilon^2 \frac{S^2}{4 \cdot B} \left[\frac{2}{1 + \sqrt{1 + \frac{S}{B}}} \right]^2 \quad [2.1]$$

donde S es la tasa de recuento neta de la muestra, ϵ es la desviación estándar relativa de S, B la tasa de recuento del fondo y $T = T_{S+B} + T_B$ la suma de los tiempos de recuento de la muestra y del fondo. La dependencia de la FOM en dos situaciones límites es:

- Cuando la tasa de recuento de la muestra es pequeña comparada con la del fondo, la FOM es proporcional al

cuadrado de ésta e inversamente proporcional a la tasa de recuento del fondo.

$$FOM \approx e^2 \frac{S^2}{4 \cdot B} \quad [2.2]$$

- Si la tasa de recuento de la muestra es grande respecto a la del fondo, la FOM es proporcional a la tasa de recuento de la muestra.

$$FOM \approx e^2 \cdot S \quad [2.3]$$

La situación normal en las medidas de bajas actividades es la primera. Para maximizar la FOM hemos de aumentar la tasa de recuento de la muestra. Al ser las concentraciones de los radionúclidos de interés generalmente muy bajas, es conveniente, e incluso necesario, un pretratamiento físico-químico de las muestras que incremente la actividad específica de las mismas. Por la misma razón, los sistemas de detección que usemos deben presentar una eficiencia de detección lo más alta posible. Finalmente hay que considerar que la disminución del nivel de fondo se traduce en un incremento de la FOM. A continuación estudiamos someramente estos dos últimos factores, que dependen fundamentalmente del tipo de detectores empleado.

2.1.1 Eficiencia.

La eficiencia de un sistema de detección de radiaciones es la relación existente entre el número de sucesos detectados y el número total de ellos que se ha producido en la muestra. Una alta eficiencia de recuento nos permitirá aumentar el número de sucesos detectados, con la consiguiente disminución de su incertidumbre.

Son numerosos los factores que afectan la eficiencia de un detector, siendo uno de los más importantes la disposición geométrica relativa entre la muestra y el detector. Cuando la

actividad de la muestra problema es presumiblemente baja, la optimización del ángulo sólido subtendido por la muestra respecto al detector aumentará la tasa de recuento de los eventos detectados. Los recipientes tipo Marinelli, empleados con frecuencia en espectrometría gamma, son un buen ejemplo de la optimización de la geometría de recuento. En la figura 2.1.1 se muestra un recipiente Marinelli.

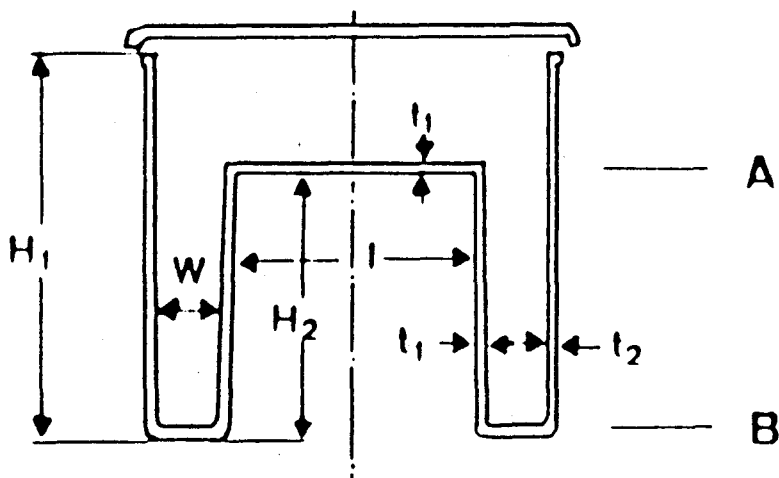


Figura 2.1.1 Recipiente tipo Marinelli.

Dependiendo de la naturaleza de la radiación medida se hará la elección del tipo de detector que ha de usarse. Para mejorar la eficiencia de detección habrá que inclinarse por aquellos con mayores volúmenes activos. La apropiada selección de los parámetros del sistema detector, como la tensión aplicada, umbrales discriminadores, etc., pueden significar un aumento de la eficiencia.

Finalmente advertimos que un aumento de la eficiencia lleva consigo un aumento en el nivel de fondo natural de los detectores. La situación óptima en las técnicas de recuento de bajo nivel sería aquella en que la eficiencia de detección del radionúclido problema fuese máxima, manteniendo la eficiencia para las radiaciones distintas a un nivel mínimo.

2.1.2 Fondo.

Como ya se apuntó antes, la eficiencia de recuento no es el único factor que ha de tenerse en cuenta cuando se realizan medidas de bajas actividades, sino que existe un segundo requisito: mantener el fondo del sistema detector en el nivel más bajo posible. Con un fondo del sistema detector bajo se facilita la distinción entre las detecciones ocasionadas por el radionúclido problema y aquellas debidas a causas ajenas, conduciendo también a una disminución de la incertidumbre de la determinación.

Cuando se efectúa una medida con cualquier detector en ausencia de muestra aparecen cuentas, que son las denominadas fondo. Son diversas las causas que originan el fondo de un detector. Por una parte podemos señalar la radiactividad procedente de las inmediaciones del detector y de los elementos que lo componen, debida a radionúclidos naturales o artificiales. La radiactividad inducida por la interacción de los rayos cósmicos con los materiales del sistema detector origina también una parte de la radiación de fondo. Finalmente, se originan cuentas espurias provocadas por ruidos electrónicos en los componentes del sistema detector, por interferencias en la red eléctrica de alimentación, por microfonía y por la transmisión de vibraciones mecánicas.

La manera de proceder para disminuir la contribución del fondo consiste en el aislamiento del sistema detector. La red de alimentación del sistema, así como la toma de tierra, han de estar libres de interferencias de otros aparatos. El aislamiento mecánico del sistema es también una medida importante para la reducción del nivel de fondo.

Más difíciles y más costosas de evitar son las contribuciones de la radiactividad del entorno y la inducida por la radiación cósmica. Una cuidadosa selección de los materiales

que forman el detector, de forma que contengan las concentraciones más pequeñas de radionúclidos, es indispensable para los sistemas de bajo nivel. La reducción de la influencia de los materiales próximos al detector y de la radiación cósmica se consigue con el uso de blindajes. El blindaje de un detector puede ser pasivo o activo.

Los blindajes pasivos aíslan al detector del entorno en el que se encuentra separándolo de él con materiales adecuados. Estos materiales se eligen de forma que presenten una alta probabilidad de interacción con la radiación exterior, y suelen tener, por tanto, altos números atómicos. Los materiales corrientemente empleados para formar parte de los blindajes pasivos son el plomo, el hierro y el mercurio, todos ellos con una antigüedad suficiente como para no presentar trazas de elementos radiactivos artificiales o ^{210}Pb en el caso del plomo. La componente de alta energía de los rayos cósmicos necesita un espesor de materia considerablemente alto para su reducción. Para evitar la contribución de la radiación cósmica es conveniente situar los laboratorios de medidas de bajas actividades bajo tierra. La selección de los materiales de construcción del laboratorio es también una medida eficaz para reducir el fondo. La elección de cementos con bajo contenido de elementos radiactivos naturales permite rebajar las contribuciones respectivas al fondo. Como ejemplo, la tasa de rayos gamma en el intervalo energético de 100 a 2000 keV recogidos por un detector de Ge(Li) se reduce por un factor 13 al trasladar el detector desde un laboratorio subterráneo, construido con cemento normal, a otro idéntico pero fabricado a partir de cemento de baja actividad. La contribución del ^{40}K se vio reducida en este mismo ejemplo por un factor 40 <OESCHGER-75>.

Los blindajes activos están formados por detectores secundarios que se colocan rodeando al detector principal. Su objeto es el de detectar las interacciones parásitas distintas a las de interés, enviando una señal al detector principal para que no las cuente. Los blindajes activos pueden funcionar en

coincidencia o en anticoincidencia con el detector principal, dependiendo de que al detector principal sólo se le permita contar los eventos sucedidos cuando en los detectores del blindaje activo se ha registrado otro suceso simultáneamente o sean precisamente éstos los sucesos que omite. Entre los blindajes activos en anticoincidencia más conocidos están los detectores de guarda de los detectores proporcionales, que protegen a éstos de los impulsos producidos por la radiación cósmica, y los sistemas de anticoincidencia con detectores centelleadores, utilizados para reducir el fondo continuo debido a dispersiones Compton en espectrómetros gamma. Como ejemplo de blindajes activos en coincidencia citaremos los detectores α - γ , β - γ y γ - γ , que sólo almacenan cuentas producidas por fotones cuando van acompañadas por detecciones de α , β o γ respectivamente, o el caso de los detectores de centelleo líquido, en los que se emplea un sistema de coincidencias entre los tubos fotomultiplicadores para reducir el fondo debido a termoelectrones.

2.1.3 Interferencias.

El problema básico de las técnicas de recuento de bajo nivel es la búsqueda de un procedimiento experimental que permita la determinación cuantitativa de bajas actividades de un radionúclido, y asegurar la identificación del mismo por la radiación emitida, energía y/o periodo de semidesintegración. Así pues, aparte de los factores de eficiencia y fondo, encontramos la necesidad de discriminar las radiaciones provenientes de otros radionúclidos distintos de aquel de interés, que puedan interferir en su determinación.

La separación química selectiva es un caso de medida contra la presencia de interferencias. No obstante, siempre es conveniente poder asegurar la pureza del radionúclido problema. García León, por ejemplo, aplica un método de discriminación basado en la forma del "plateau" para identificar la actividad

beta medida como procedente del ^{99}Tc <GARCIA LEON-84>.

Los diferentes periodos de semidesintegración permiten distinguir las actividades de ^{89}Sr y ^{90}Sr mediante dos medidas beta <JUZNIC-86>; también las distribuciones de energía de sus espectros beta pueden diferenciarse mediante dos medidas por centelleo líquido, una de ellas por efecto Cerenkov <RANDOLPH-75>. El mismo caso se presenta en la determinación de radio cuando no se realiza la espectrometría alfa; las actividades de ^{223}Ra , ^{224}Ra y ^{226}Ra se pueden calcular por el estudio del crecimiento de la actividad alfa total de la muestra <MORON-86>.

En espectrometría alfa y gamma el parámetro que define el grado de discriminación que se tiene en la medida de un radionúclido es el poder de resolución en energías de los detectores. Como veremos posteriormente, los problemas de interferencia en espectrómetros semiconductores de germanio y silicio no son, por regla general, importantes, mientras que, por el contrario, constituyen el principal inconveniente de los espectrómetros centelleadores de NaI(Tl) en el caso de radiación gamma o de las cámaras de ionización para la alfa. Existen, sin embargo, casos en los que no se puede conseguir la resolución de líneas muy próximas a pesar de emplear los espectrómetros semiconductores, tanto en espectrometría alfa como en gamma. Citemos los ejemplos típicos del ^{239}Pu y ^{240}Pu en radiación alfa y el del ^{226}Ra y ^{235}U en gamma. En ambos casos la diferencia de energías entre las emisiones de los dos radionúclidos es inferior a la resolución de los detectores semiconductores. En el capítulo 4 estudiaremos detalladamente la interferencia entre ^{226}Ra y ^{235}U .

2.2 ESPECTROMETRIA GAMMA.

La determinación sin ambigüedad de un radionúclido precisa la identificación de la radiación emitida durante su desintegración y su energía (en algunos casos será también necesario considerar el periodo de semidesintegración). Los modos

de decaimiento más usuales son las desintegraciones alfa y beta. Debido al corto recorrido de electrones y partículas alfa en la materia, la medida de los mismos ha de ir precedida de un proceso de preparación y acondicionamiento de las muestras que evite la absorción de la radiación en ellas.

Sin embargo, en muchos casos el decaimiento de un radionúclido por emisión alfa o beta no conduce directamente al estado fundamental del núcleo hijo, sino que tiene lugar a través de uno o varios estados excitados. El proceso de desexcitación de estos estados tiene lugar por emisión de rayos gamma o bien por conversión interna. Un ejemplo típico de emisión gamma es el del ^{60}Co ; el decaimiento β^- de este radionúclido conduce a dos estados excitados del núclido descendiente, ^{60}Ni . La desexcitación al nivel fundamental del ^{60}Ni tiene lugar por emisión fotónica. En la figura 2.2.1 se muestra el esquema de desintegración del ^{60}Co .

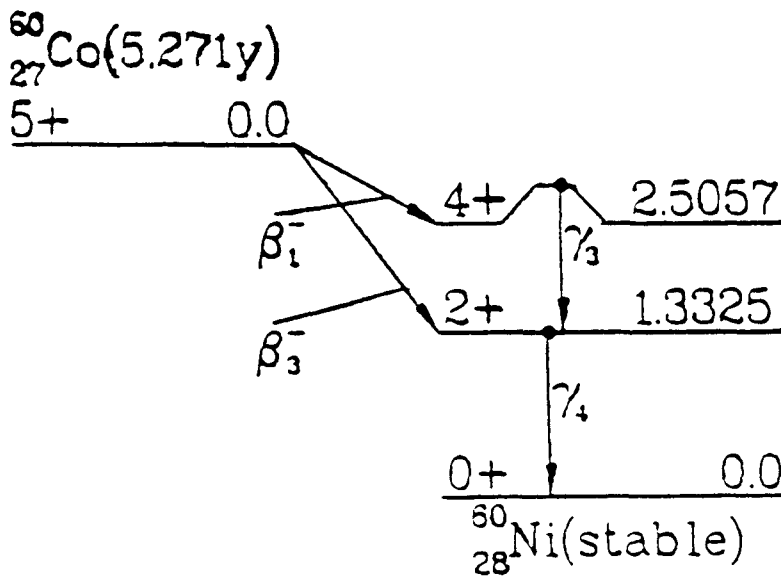


Figura 2.2.1 Esquema de desintegración del ^{60}Co , tomado de <ICRP-83>.

Para los radionúclidos en los que la probabilidad de emisión fotónica es apreciable es posible la determinación de sus actividades mediante la medida de los rayos gamma emitidos en su desintegración.

La espectrometría gamma es la técnica analítica más utilizada para realizar medidas de bajas actividades <ICRU-72>. Las ventajas que presenta sobre la medida de actividades alfa o beta son la simplicidad en la preparación de la muestra, debida al poder de penetración de los fotones gamma en la materia, y el carácter multielemental, al discriminar por la energía de la emisión los radionúclidos medidos.

2.2.1 Desarrollo histórico.

Los rayos X y gamma constituyen la fracción más energética del espectro de radiación electromagnética, y es, históricamente, la última región del mismo en ser estudiada.

El descubrimiento de los rayos X fue realizado por Roentgen, en 1895, al observar que radiaciones procedentes de las descargas en tubos de vacío producían fluorescencia en materiales situados en las inmediaciones. El estudio de los rayos X se inició utilizándose como detectores placas fotográficas, sustancias fluorescentes y cámaras de ionización, y más tarde difractómetros de cristal, desarrollados inicialmente por Bragg, y que permitieron las primeras medidas espectrométricas de estas radiaciones.

Casi al mismo tiempo, en 1896, Becquerel descubre la radiactividad natural, como consecuencia de la interacción accidental de las radiaciones emitidas con unas placas fotográficas. Villard, en 1900 identifica los rayos gamma como uno de los componentes de las radiaciones emitidas por minerales de uranio, caracterizándose por su insensibilidad a los campos magnéticos y eléctricos y por su elevado poder de penetración.

El primer avance significativo en el estudio de los rayos X y gamma viene de la mano de los detectores gaseosos, desarrollados en la primera década del siglo XX por Rutherford y Geiger, al permitir una medida cuantitativa e instantánea. Al incidir radiación en el volumen activo de estos detectores se produce ionización del gas del mismo. Los portadores de carga se recogen con un campo eléctrico aplicado, dando lugar a un pulso de corriente. Bajo determinadas condiciones del voltaje aplicado la altura de los pulsos de salida es proporcional a la energía depositada en el gas por la radiación. Mediante la colocación de filtros y absorbentes adecuados y con la selección de discriminadores de altura de pulsos es posible la medida de la actividad gamma, aislada de la contribución de alfas y/o betas. El principal problema de estos detectores radica en la baja probabilidad de interacción de los fotones con el gas del detector, debido a su pequeña densidad y al elevado poder de penetración de las partículas gamma. Por este motivo, la utilidad de estos detectores está limitada al campo de bajas energías, donde presentan una mayor eficiencia de detección y pueden proporcionar espectros.

Los primeros detectores de rayos gamma aptos para su empleo en recuentos de bajas actividades fueron los cristales de NaI(Tl). En 1948 se publica el primer trabajo sobre la detección de radiación gamma con cristales de NaI(Tl) <HOFSTADTER-48>, pero no es hasta 1950 cuando se consigue obtener detectores espectrométricos, pudiéndose medir las energías de los fotones <McINTYRE-50>.

La aparición de los detectores centelleadores de fotones supuso una revolución en la espectrometría gamma, al proveer un aparato con una alta eficiencia de recuento y una moderadamente buena resolución energética (7 % a 662 keV). Las mejoras conseguidas en las prestaciones de los tubos fotomultiplicadores y en los equipos electrónicos asociados junto al incremento en el tamaño y número atómico de los cristales centelleadores condujo a un aumento significativo de la

eficiencia, aunque no de la resolución en energías. Entre los distintos materiales centelleadores aptos para la detección de fotones los más utilizados fueron los cristales de NaI(Tl) y el CsI(Tl). Los plásticos centelleadores y el germanato de bismuto, $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, conocido como BGO, son otras sustancias utilizadas para la detección de fotones gamma, aunque sus características (peor resolución y eficiencia que los cristales de NaI(Tl)) hacen que se utilicen en situaciones especiales.

Los espectrómetros gamma de centelleo fueron y siguen siendo empleados para muchos propósitos <HEATH-79>. Sin embargo, a pesar de la popularidad de los detectores de NaI(Tl) y de su rápida aceptación, se continuaron los esfuerzos por mejorar la resolución energética de los detectores de radiación gamma. Paralelamente al desarrollo de los detectores centelleadores se trabaja en la puesta a punto de espectrómetros magnéticos de electrones. Como la desexcitación de los estados nucleares excitados tiene lugar tanto por emisión gamma como por conversión interna, el estudio de estos electrones proporciona información acerca de las propiedades de las transiciones gamma. La resolución alcanzada por los espectrómetros de electrones, en torno al 1 % a 662 keV, es superior a la de los detectores de NaI(Tl) <DEBERTIN-88>.

Las mejoras en el poder de resolución de los espectrómetros gamma tienen su máximo con el desarrollo de los espectrómetros de difracción, a comienzos de los 60. Estos detectores, basados en la difracción de Bragg de los rayos gamma en los planos de un cristal curvado, presentan resoluciones del 0.001 %, permitiendo la medida precisa de las energías de las transiciones gamma. Por contra, la eficiencia de los difractómetros gamma es muy pobre, por lo que su empleo está restringido a fuentes de radiación muy intensas, para fines metrológicos (obtención de datos y parámetros nucleares como energías e intensidades de emisión de las transiciones gamma).

Finalmente, la posibilidad de utilizar una cámara de

ionización sólida es llevada a la realidad con el desarrollo e implementación de los detectores semiconductores, en los años 60. La pequeña energía necesaria para crear un par electrón hueco (los portadores de carga en los semiconductores) hacía prever que la resolución energética de éstos sería superior a la de los detectores centelleadores y proporcionales. La energía media necesaria para crear un par de portadores de carga es de 3 a 4 eV para semiconductores y de unos 30 eV para detectores gaseosos; los detectores centelleadores sólidos requieren una energía de 100 eV aproximadamente para producir un fotoelectrón. Como consecuencia, el número de portadores de carga que se producirán por la absorción de una determinada cantidad de energía en un material semiconductor será mayor que el correspondiente a un gas o cristal centelleador. Al no ser los procesos de formación de los pares de portadores independientes, la distribución del número de éstos no será poissoniana. La dispersión cuadrática media en el número de portadores, que nos informará del poder de resolución energética del detector, viene dada por la expresión <KNOLL-79>:

$$W=2.355\sqrt{F\cdot E\cdot e} \quad [2.4]$$

donde E es la energía del fotón, e es la energía media de formación de un par electrón-hueco y F es el factor de Fano, constante característica de cada material semiconductor. La fluctuación en el número de portadores disminuirá con el número de éstos creados, por lo que la resolución intrínseca en energías será mejor para los semiconductores.

Los requisitos fundamentales en los materiales de construcción de los detectores semiconductores eran la posibilidad de obtención de un monocristal de tamaño suficientemente grande y la creación de una región intrínseca en el mismo. Los únicos materiales que presentaban dichas posibilidades eran el silicio y el germanio. De ahí el desarrollo inicial de los detectores de Si(Li) y Ge(Li), en los que se lleva a cabo una difusión de átomos de litio para conseguir la creación

de la zona de carga espacial por compensación de las impurezas negativas del cristal. El principal inconveniente de estos detectores era la necesidad de mantenerlos a muy bajas temperaturas (por debajo de 77 K, temperatura de ebullición del nitrógeno), no sólo durante su funcionamiento (para reducir la corriente de fuga), sino durante toda su vida útil, para evitar la difusión de los átomos de litio que dañarían irreversiblemente el detector. Una desventaja adicional de estos detectores la constituía el pequeño tamaño de los mismos, con la consiguiente disminución de la eficiencia respecto a los detectores de NaI(Tl).

La buena resolución energética que presentaban los detectores semiconductores y la creciente necesidad de realización de medidas de radiación suponen un impulso notable en la investigación y desarrollo relacionada con la mejora de éstos y sobre la utilización de otros materiales semiconductores de mayor densidad y número atómico. Respecto a la mejora en los detectores de silicio y germanio hay que destacar el incremento en el tamaño de las regiones activas de los detectores, que posibilitó un aumento de la eficiencia de recuento, y la obtención de estos materiales en estado hiperpuro, evitándose el dopado de las zonas activas con litio. Este último logro permite almacenar los detectores, cuando no están en funcionamiento, a temperatura ambiente. Destaquemos que a partir de los primeros años de la década de los 80 los detectores de Ge(Li) han dejado de comercializarse, abriendo paso a los de germanio hiperpuros o intrínsecos, HpGe o Ge(i).

Los nuevos materiales semiconductores que se vienen investigando para su empleo como detectores de fotones son binarios, compuestos por dos elementos, entre los que destacan CdTe y HgI₂. Presentan la ventaja de su posible funcionamiento a temperatura ambiente, pero hasta el momento existe una seria limitación en el tamaño de los cristales y en su resolución energética <ARMANTROUT-82>.

2.2.2 Espectrometría gamma de alta resolución.

En el apartado 2.1 se discutieron los requisitos generales que han de satisfacer las técnicas de recuento de bajo nivel. La espectrometría gamma aplicada a la medida de bajas actividades deberá seguir las exigencias comunes a las técnicas de recuento de bajo nivel, que podemos resumir en la maximización de la figura de mérito, FOM. En este apartado estudiaremos con más profundidad la eficiencia y el fondo de los espectrómetros semiconductores de germanio, que serán aplicables a los dos sistemas detectores utilizados en este trabajo. El tema de la resolución energética, que es propio de las técnicas espectrométricas, también será abordado. Finalmente, desarrollaremos el concepto de límite de detección para espectrometría gamma, que nos permitirá conocer la aplicabilidad de esta técnica analítica en diversas situaciones.

2.2.2.1 Eficiencia.

En general, se puede definir la eficiencia de un detector de rayos gamma como la relación existente entre el número de fotones detectados y los emitidos por la fuente radiactiva. Los parámetros propios que influyen en la eficiencia de un espectrómetro gamma son el volumen activo del detector y su configuración (ventanas y zonas insensibles).

Debido a las especiales características de los espectros gamma se pueden definir varios tipos de eficiencias <DEBERTIN-88>, pero la más usada es la eficiencia de pico, y ello puesto que se está interesado en la identificación del emisor (por su energía/as) y en su cuantificación (por el valor del área neta de uno de sus fotopicos). La eficiencia absoluta de pico se define como la relación entre el número neto de cuentas en el fotopico y los rayos gamma emitidos por la fuente con esa energía. En términos físicos la eficiencia de pico es la

probabilidad de que un fotón emitido por la muestra deposite toda su energía en el volumen activo del detector.

La eficiencia de un detector de rayos gamma será función de la energía del fotón, del número atómico y de la forma del detector y de la disposición geométrica entre la muestra y el detector.

Para la detección de un fotón éste tiene que interaccionar con el detector. Los procesos principales de interacción entre los fotones gamma y la materia son el efecto fotoeléctrico, el efecto Compton y la creación de pares. Las secciones eficaces de estas tres interacciones tienen dependencias complejas con la energía del fotón y con el número atómico del material, que podemos resumir así:

$$\begin{aligned}\sigma_{\text{fotoel}} &\approx Z^{4.5} E^{-3.5} && [2.5] \\ \sigma_{\text{compton}} &\approx Z E^{-1} \\ \sigma_{\text{pares}} &\approx Z^2 E \ln(E/m_c)\end{aligned}$$

De la dependencia con el número atómico se concluye la mayor probabilidad de interacción de los fotones gamma con materiales de alto número atómico, y la conveniencia de emplear estos materiales para la fabricación de los detectores gamma. De los elementos semiconductores más ampliamente utilizados para la construcción de espectrómetros gamma, silicio y germanio, será este último el que presente una mayor eficiencia por razón de su mayor número atómico. Los espectrómetros de Si(Li) sólo se utilizan para el intervalo de menor energía de rayos X y gamma, como veremos en el capítulo 3.

La compleja dependencia de la eficiencia con la energía de los fotones y el factor geométrico muestra-detector hacen que no sea posible la obtención de una fórmula analítica para la eficiencia en función de estos parámetros (energía de los fotones, distancia muestra-detector, radio de la muestra, etc.). El cálculo de la función eficiencia-energía se puede realizar por

el ajuste de un conjunto de puntos experimentales, por una simulación por el método de Monte Carlo <AUBIN-69>, o por resolución numérica de la ecuación de transmisión de los fotones <NAKAMURA-75>. Estos dos últimos métodos no son muy precisos, debido fundamentalmente a las incertidumbres con que se conocen los coeficientes de atenuación de los fotones <STORM-67> y a la forma incierta de la zona activa de los detectores de germanio <DEBERTIN-82>. Es por ello por lo que es imprescindible el cálculo experimental de las eficiencias para un conjunto de energías y geometrías de medida y su posterior ajuste <RIEPP0-87>.

2.2.2.2 Fondos.

El fondo de los detectores semiconductores de germanio está constituido por un espectro continuo en el que aparecen líneas monoenergéticas. Si ampliamos la definición de fondo a todos los sucesos registrados por el detector que no presentan interés, podemos establecer una distinción entre el fondo en ausencia de muestra y el fondo debido a la muestra misma.

El fondo en ausencia de muestra está causado por la radiactividad existente en el ambiente y en los materiales del laboratorio y del sistema detector, por la radiación cósmica y la radiactividad inducida por ella, y, finalmente, por las interferencias de tipo eléctrico y mecánico que puedan afectar al detector. Estas últimas contribuciones al fondo pueden evitarse mediante un aislamiento eléctrico y mecánico del sistema detector, como se indicó en el apartado 2.1.2.

Los materiales de construcción del laboratorio y del mismo sistema detector contienen, en general, pequeñas concentraciones de radionúclidos naturales (fundamentalmente ^{40}K y los miembros de las tres series radiactivas naturales ^{238}U , ^{232}Th y ^{235}U). Adicionalmente pueden estar presentes trazas de radionúclidos artificiales, como ^{137}Cs y ^{60}Co .

La contribución de las actividades de estos radionúclidos en el espectro de fondo de un detector de germanio es a través de líneas gamma características de éstos y de un aumento del continuo, debido a efectos Compton y a otras radiaciones emitidas durante su desintegración (como radiación de frenado en los emisores beta). En la figura 2.2.2 se muestra un espectro de fondo recogido con un detector de germanio provisto con un blindaje pasivo de 10 cm de plomo, donde se han indicado la energía y el emisor de los principales fotopicos que aparecen en él.

Los materiales más adecuados para su empleo como blindaje de espectrómetros gamma son el plomo y el hierro (también se emplea mercurio, aunque con mucha menos frecuencia <KAYE-72>). Malm et al. muestran una reducción de dos órdenes de magnitud en la tasa de cuentas integrada en el intervalo energético de 50 a 3000 keV para un detector de germanio (10% de eficiencia relativa) al rodearlo con una capa de 10 cm de plomo <MALM-84>. El espesor del blindaje ha de ser lo suficientemente grande como para reducir la radiación de fondo hasta niveles adecuados. Por ejemplo, a partir del espesor de semirreducción del plomo para fotones de 1000 keV, 10 g/cm², podemos calcular que una capa de este metal de 100 g/cm² (8.8 cm) reducirá el flujo de fotones de esta energía por un factor 1000; con un espesor de 10 cm de plomo, o 15 cm de hierro, tendremos una buena atenuación de la radiación en las inmediaciones del detector. Aumentar más el espesor del blindaje no tiene efectos de atenuación significativos, pero sí económicos. Una última consideración a propósito de los materiales del blindaje es su origen: el plomo puede contener cantidades significativas de uranio, y, si no tiene una antigüedad de unos 100 años, también puede aparecer ²¹⁰Pb; en el hierro, si no es antiguo, se pueden encontrar trazas de ⁶⁰Co. Es preciso mantener un control sobre los materiales elegidos para formar el blindaje.



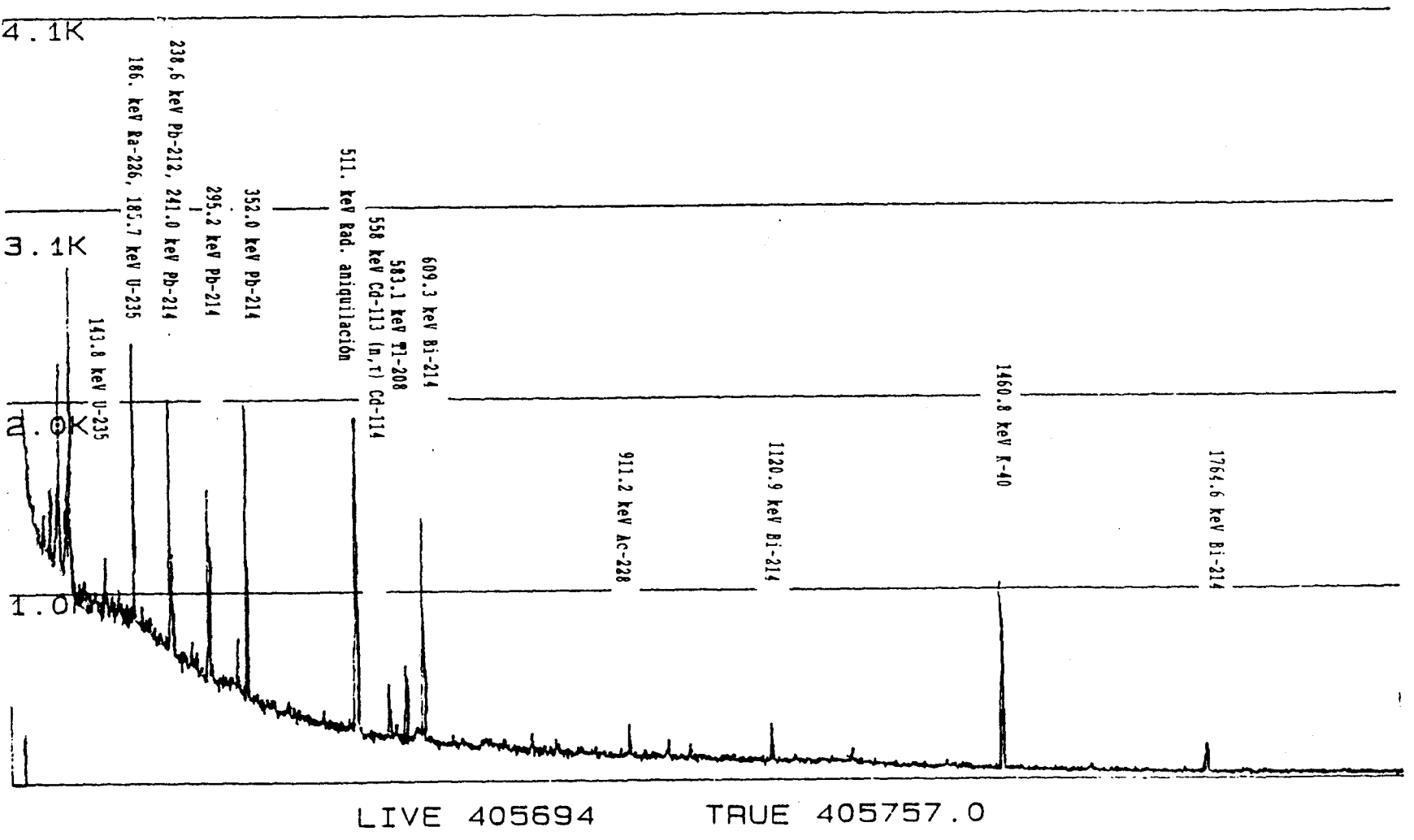


Figura 2.2.2 Espectro de fondo de un detector de Ge(Li) entre 50 y 2000 keV.

Una fuente importante de actividad en el ambiente es la debida a los descendientes del ^{222}Rn , entre los cuales hay emisores gamma importantes. Al ser el radón un gas, emana de la superficie de los materiales que contienen uranio y pasa a la atmósfera. Es conveniente evitar que el radón se acumule en el laboratorio de medidas y en las inmediaciones del detector. Para ello se suele utilizar un sistema de aire acondicionado con intercambio de aire en la sala de recuento y una sobrepresión de nitrógeno en el interior de la cavidad del blindaje para desplazar el radón atmosférico <ZIMMER-84>.

La radiación cósmica constituye otra fuente importante del fondo de los detectores de radiación. La composición de la radiación cósmica es bastante compleja, y para los propósitos de esta discusión bastará con que distingamos la componente nucleónica, una componente suave, formada por fotones y electrones principalmente, y la componente muónica de alta energía. La componente suave contribuye al espectro continuo, y es reducida por el blindaje pasivo de forma satisfactoria. Más difíciles de eliminar son las componentes restantes, debido a su gran poder de penetración en la materia.

Podemos distinguir tres efectos principales provocados por la radiación cósmica en el espectro de fondo de un detector de germanio:

- En primer lugar, al interaccionar las partículas cargadas de la radiación cósmica en el volumen sensible del detector darán lugar a pulsos correspondientes a la energía depositada en éste. Al ser estas energías elevadas, del orden de 10 MeV, aumentarán el fondo continuo del espectro. Este efecto puede ser reducido mediante blindajes activos de anticoincidencia (cosmic veto shield).

- La interacción de las partículas energéticas de los rayos cósmicos con los materiales del blindaje da lugar a reacciones nucleares inducidas y a la presencia de

neutrones que, a su vez, originarán otras reacciones de activación. Muchas de estas reacciones van seguidas por la emisión de rayos gamma, que aparecerán en el espectro de fondo. Roy et al. realizan un interesante estudio de los fotopicos producidos por reacciones entre los neutrones inducidos por la radiación cósmica y los materiales del blindaje, el detector mismo (el germanio del diodo y los contactos eléctricos de indio) <ROY-89>. Paradójicamente, reduciendo el espesor del blindaje activo disminuiría esta componente; esta es la razón más importante para mantener el espesor de los blindajes masivos en su justo punto.

- Finalmente, la interacción de los rayos cósmicos con la materia producirá cascadas de partículas secundarias (protones, electrones y positrones), que al perder energía emitirán radiación de frenado y cuantos de aniquilación. Por su origen contribuirán a pulsos con menores energías respecto a los dos efectos anteriores.

El fondo debido a la muestra tiene su origen en sucesos que no dan lugar a la absorción completa de la energía de los fotones en la muestra y a la interacción de otras radiaciones emitidas por la misma.

Por una parte podemos distinguir la contribución de los rayos gamma que han sufrido un efecto Compton, bien sea en el volumen activo del detector o en sus inmediaciones, sin que se deposite la totalidad de la energía del fotón original en la región activa del detector. La dispersión Compton es la principal fuente de la distribución continua de pulsos en el espectro, y origina los llamados borde Compton y pico de retrodispersión.

También contribuye al fondo continuo la radiación de frenado de electrones emitidos por desintegraciones beta en el detector y en sus proximidades.

El método tradicional de reducir el fondo continuo es

mediante un blindaje activo en anticoincidencia con el detector principal. Existe una amplia literatura sobre los detectores anticompton, <MARTI-90>, que han sido bastante utilizados en la espectrometría gamma de muy bajo nivel. El principal inconveniente de estos sistemas es que suprimen, junto con una parte importante del continuo Compton, las emisiones gamma que se efectúan en coincidencia, como la de ^{60}Co . Otro inconveniente de estos sistemas es su precio, que puede doblar al de un sistema normal. Por estas razones el empleo de detectores con blindaje anticompton ha de ser cuidadosamente estudiado en función de las actividades que se vayan a determinar.

Otros picos pueden aparecer en el espectro como consecuencia de la actividad que se está midiendo. Estos picos son el pico de aniquilación, al que contribuyen los positrones absorbidos en el detector (producidos por creación de pares o por desintegración β^+), los picos de escape simple y doble, formados al escapar uno o dos de los cuantos de aniquilación formados en la creación de pares, los picos suma (en coincidencia o al azar), que se producen al absorberse simultáneamente dos fotones emitidos por la fuente (bien sea por ser éstos emitidos en coincidencia o por una casualidad), los picos de escape de rayos X, que corresponden a sucesos fotoeléctricos en los que el rayo X del germanio ha escapado del detector, y los picos de fluorescencia de rayos X, que son debidos a la absorción de rayos X inducidos en el blindaje por la actividad gamma de la muestra.

La contribución de todos estos picos al espectro de la muestra ha de ser considerada, puesto que se pueden producir errores en la determinación de la respuesta del detector a los rayos gamma medidos.

Un caso interesante lo constituyen los rayos X producidos en el blindaje por las radiaciones que inciden en él. Al ser absorbidos en el volumen activo del detector dan lugar a los picos de fluorescencia. En el caso de blindajes de plomo los picos de fluorescencia aparecerán entre 70 y 80 keV. La

intensidad de estos picos puede reducirse poniendo en línea con el blindaje de plomo otros blindajes suplementarios para la radiación de fluorescencia, con números atómicos decrecientes, para que los diferentes rayos X inducidos en ellos, de menor energía por tener menor número atómico, sean absorbidos por la capa interior. El cadmio o el estaño y el cobre son los elementos más utilizados para estos fines. El espesor de estas capas adicionales de blindaje debe ser el adecuado para absorber los rayos X de fluorescencia (algunos milímetros son suficientes), puesto que una mayor cantidad aumentará las interacciones con la radiación cósmica y con la actividad de la muestra sin ningún beneficio como contrapartida. Cuando el blindaje es de hierro no son necesarios estas capas adicionales.

2.2.2.3 Resolución.

La resolución energética de un detector de germanio depende de tres factores:

- Estadística del proceso de creación de pares electrón hueco, que es propia del material del detector. Cuanto mayor sea el número de portadores de carga producidos por unidad de energía, menor será la fluctuación en el mismo.

- Eficiencia del proceso de recolección de cargas en el detector, parámetro que depende de la presencia de impurezas y defectos en el cristal detector.

- Ruido electrónico, motivado principalmente por la corriente de fuga del detector.

El parámetro que se utiliza en espectrometría gamma para caracterizar la resolución de un detector es la anchura del pico a mitad de máximo, FWHM (Full Width at Half Maximum) <IEEE-86>. Para su determinación se suele ajustar el pico gamma a una

gaussiana por el método de los mínimos cuadrados <PUTNAM-65>. La relación entre la anchura W de la gaussiana y la FWHM es:

$$FWHM = 2 \cdot \sqrt{2} \cdot W \quad [2.6]$$

La resolución de un detector se suele especificar para unas energías concretas, a fin de que sean comparables. Estas son 1333 keV (^{60}Co), 122 keV (^{57}Co) y 5.9 keV (^{55}Fe) según el intervalo de energías del detector.

Además de la reducción de interferencias, la mejora de la resolución de un detector de germanio permite aumentar su sensibilidad, puesto que al ser los picos más estrechos habrá que considerar menor número de canales para calcular el fondo continuo sobre el que se encuentra. Este hecho se verá más detenidamente en la sección de límites de detección. Adicionalmente, los detectores con mejor resolución presentan una razón pico Compton mayor, por ser mayor la altura del fotopico cuanto menor es el número de canales sobre los que se encuentra, con la consiguiente disminución del fondo continuo del espectro.

2.2.2.4 Límites de detección.

El término "límite de detección de una técnica analítica" es lo suficientemente ambiguo como para haber sido definido de diversas y contradictorias maneras <CURRIE-68>. Hoy día parece existir un acuerdo en la comunidad científica para utilizar la formulación de Currie, basada en la teoría estadística de prueba de hipótesis (statistical hypothesis testing). La aplicación de este formalismo a la espectrometría gamma ha sido realizada por varios autores (<ROGERS-70>, <PASTERNAK-71>, <HEAD-72>, <HARTWELL-75>, <OBRUSNIK-78>, <MUNDSCHENK-80>, <SANCHEZ MAYORAL-85>).

Las dos preguntas básicas que se plantean al interpretar los resultados de una medida de baja actividad son

<DONN-77>:

1. ¿ Presenta la muestra medida actividad neta por encima del fondo ?

2. ¿ Está la actividad de la muestra por debajo de algún límite preseleccionado ?

Las respuestas a estas dos preguntas se deben dar para un nivel de confianza estadística determinado.

La primera de las preguntas incide en el criterio de detectabilidad: ¿ Cuando podemos afirmar, por el recuento de una medida, que la muestra presenta actividad ? Para el caso especial de la espectrometría gamma el criterio de detectabilidad hay que referirlo a los fotopicos del espectro: ¿ Cuando podemos afirmar que el área de un pico del espectro es, para un nivel de confianza determinado, representativa de un fotopico real, en contraposición a las fluctuaciones aleatorias del fondo continuo del espectro ?

Se define un nivel crítico de detectabilidad, L_c , por debajo del cual no se puede detectar con seguridad una señal inmersa en el fondo. Al referirnos a "con seguridad" se hace referencia a un nivel de confianza estadística de que la hipótesis de presencia de actividad en la muestra es correcta. Dos tipos de errores podemos diferenciar a propósito de esta hipótesis:

- Error de primera especie: decidir que un resultado es indicativo de presencia de actividad cuando no lo es, con probabilidad α .

- Error de segunda especie: concluir que no hay actividad cuando en realidad si la hay, con probabilidad β .

Las cantidades $1-\alpha$ y $1-\beta$ son las probabilidades de no cometer

error de primera o segunda especie respectivamente.

Antes de desarrollar el formalismo matemático de los límites de detección exponamos la notación que se empleará:

Fondo.- Número de cuentas en la línea base de un fotopico de interés, debidas principalmente a dispersión Compton. Se determina en la misma medida que la muestra.

B: fondo medido debajo de un fotopico.

σ_B : desviación estándar de B.

Interferencia.- Area neta residual de un fotopico de interés motivada por el fondo ambiental (sólo se aplica a fotopicos que aparecen en el espectro de fondo del detector, como el de 1460 keV del ^{40}K). Se calcula en una medida sin muestra. Los valores que se utilizan aquí están normalizados al tiempo de medida de la muestra.

I: área neta debida a la interferencia.

σ_I : desviación estándar de I.

Integral.- Es el número total de cuentas que aparecen en la región del fotopico de interés.

G: integral del fotopico.

σ_G : desviación estándar de G.

Area neta.- Area neta del fotopico debida exclusivamente al radionúclido de interés.

S: área neta.

σ_S : desviación estándar de S.

$$S = G - B - I \quad [2.7]$$

$$\sigma_S^2 = \sigma_G^2 + \sigma_B^2 + \sigma_I^2$$

Los valores reales o verdaderos de estas cantidades, que no son observables si no es en el límite de un número infinito de medidas, se denotan con μ_X , donde X puede ser B, I, G o S, según corresponda.

Si suponemos que no aparecen errores sistemáticos y que contamos con un número de cuentas no excesivamente pequeño, podemos aplicar la distribución normal de probabilidades. El nivel crítico de detectabilidad viene dado por el valor máximo permitido de la probabilidad de cometer un error de primera especie, α , y la desviación estándar de la señal neta cuando no existe actividad (caso de ser $\mu_s = 0$), que llamaremos σ_0 ; para este caso tendremos para L_C :

$$L_C = k_\alpha \cdot \sigma_0 \quad [2.8]$$

donde k_α es la abcisa de la distribución normal de probabilidades correspondiente a un nivel de confianza $1 - \alpha$:

$$\alpha = \int_{k_\alpha}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{x^2}{2}} dx \quad [2.9]$$

Si el resultado de una medida está por encima del nivel crítico se podrá asegurar, dentro del intervalo de confianza elegido, que se ha detectado actividad.

Una vez determinado el nivel de detectabilidad se puede especificar el límite de detección, L_D , de una medida. Para ello hay que combinar el nivel crítico, L_C , el valor máximo permitido de la probabilidad de cometer un error de segunda especie y la desviación estándar de la señal neta en el caso de ser la actividad igual al límite de detección ($\mu_s = L_D$). Si llamamos σ_D a la desviación estándar del área neta en el caso $\mu_s = L_D$, la expresión del límite de detección será:

$$L_D = L_C + k_\beta \cdot \sigma_D \quad [2.10]$$

donde k_β es la abcisa de la distribución normal correspondiente a un nivel de probabilidad $1 - \beta$:

$$\beta = \int_{-\infty}^{k_\beta} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{x^2}{2}} dx \quad [2.11]$$

En la figura 2.2.3 se representan las distribuciones de probabilidad de S para los casos $\mu_S=0$ y $\mu_S=L_D$, mostrándose los intervalos correspondientes a α y β .

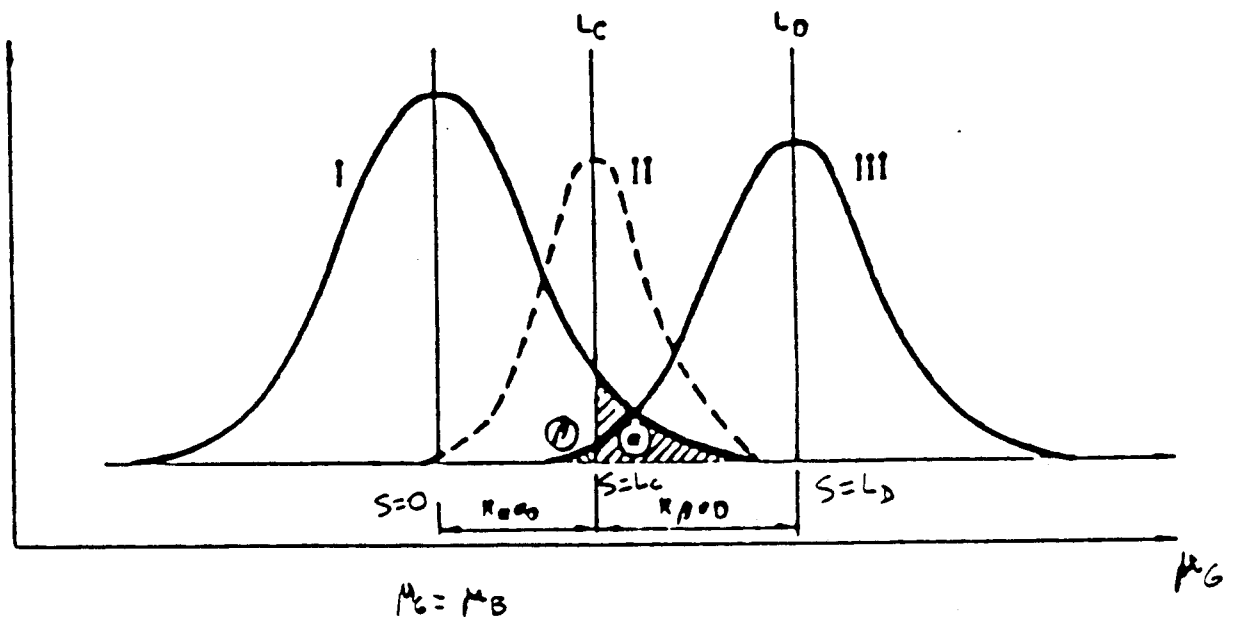


Figura 2.2.3 Distribuciones de probabilidad del área neta para los casos $S=0$, $S=L_C$ y $S=L_D$.

Las expresiones de las desviaciones estándar serán:

$$\begin{aligned} \sigma_S^2 &= \sigma_G^2 + \sigma_B^2 + \sigma_I^2 & [2.12] \\ &= \mu_S + \mu_B + \mu_I + \sigma_B^2 + \sigma_I^2 \\ &\approx S + B + I + \sigma_B^2 + \sigma_I^2 \end{aligned}$$

donde se han aproximado los valores reales μ_s , μ_B y μ_I por los valores medidos, que son las mejores estimaciones de éstos que tenemos. En el caso de ser $\mu_s = 0$:

$$\sigma_0^2 = \mu_B + \mu_I + \sigma_B^2 + \sigma_I^2 \quad [2.13]$$

Si $\mu_s = L_D$:

$$\sigma_D^2 = L_D + \mu_B + \mu_I + \sigma_B^2 + \sigma_I^2 \quad [2.14]$$

La situación más frecuente es aquella en la que las probabilidades de cometer errores de primera y segunda especie son iguales ($k_\alpha = k_\beta = k$). Las expresiones para L_C y L_D serán:

$$L_C = k \cdot (\mu_B + \mu_I + \sigma_B^2 + \sigma_I^2)^{1/2} \quad [2.15]$$

$$L_D = k^2 + 2 \cdot L_C \quad [2.16]$$

Una vez que tenemos desarrollado el formalismo general pasaremos al caso de la espectrometría gamma sin más que sustituir las expresiones propias del fondo, B, y su desviación standard, σ_B . El cálculo del fondo o línea base de los fotopicos varía según el método empleado para calcular el área. Esta se puede calcular por métodos digitales o por ajuste de los puntos a una función gaussiana. En nuestro caso, el fondo de los picos se determinó siguiendo una modificación del método del área total, efectuando un promedio del contenido de n canales a cada lado de la región donde aparece el pico de interés (con N canales de amplitud).

$$\mu_B \approx B = \frac{N}{2 \cdot n} \cdot (B_1 + B_2) \quad [2.17]$$

$$\sigma_B^2 = \left(\frac{N}{2 \cdot n} \right)^2 \cdot (B_1 + B_2) \quad [2.18]$$

En estas fórmulas B_1 y B_2 son el número de cuentas acumuladas en los n canales anteriores y posteriores a la posición del pico de interés. Sustituyendo en la expresión de L_C :

$$L_C = k \cdot \sqrt{B \cdot \left(1 + \frac{N}{2 \cdot n}\right) + I + \sigma_I^2} \quad [2.19]$$

El área de los picos del espectro se tendrá que comparar con el valor de L_C para tomar la decisión acerca de su relevancia estadística. Para determinar la mínima actividad detectable, MAD, se utilizará la expresión de L_D junto con los factores adecuados que nos pasen de cuentas a actividad:

$$MAD = \frac{L_D \cdot e^{\ln 2 \cdot \frac{T_d}{T_{1/2}}}}{T \cdot Y \cdot \epsilon \cdot \text{eff} \cdot M} \quad (\text{Bq/u}) \quad [2.20]$$

donde

- T_d : Tiempo entre la toma de la muestra y su medida.
- $T_{1/2}$: Periodo de semidesintegración del radionúclido.
- T : Duración de la medida (en segundos).
- Y : Intensidad de emisión fotónica del radionúclido.
- ϵ : Eficiencia de recuento para la energía y geometría medida.
- M : Masa o volumen de la muestra (en unidades $u = g, l, m^3, \text{etc.}$).

Los límites de detección en espectrometría gamma tienen una aplicabilidad más reducida que los correspondientes a otras técnicas de medida, puesto que hay que considerar el fondo ambiental (que hemos llamado interferencia) y el fondo continuo del espectro de la muestra problema. Dependiendo de la composición de la muestra y de la presencia de otros radionúclidos emisores gamma de mayor energía, la línea base de los fotopicos variará. Este problema de límites de detección en muestras multielementales ha sido tratado por Pasternack y Harley <PASTERNAK-71>. No obstante, para los propósitos de caracterización y optimización de detectores, calcularemos los límites de detección para espectros de fondo, siguiendo las recomendaciones de la United States Environmental Protection Agency <EPA-80>. Cuando se trate de establecer niveles máximos de actividad de un radionúclido presente en una muestra determinada se utilizará el espectro de esa misma muestra.

2.2.3 Ventajas de la espectrometría gamma con detectores semiconductores de germanio.

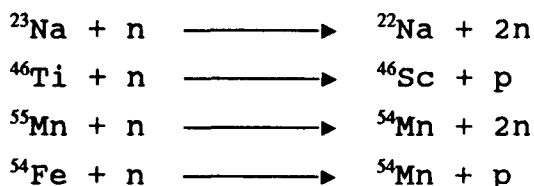
Las principales ventajas que presenta la determinación de radionúclidos por la medida de los fotones emitidos frente a la de electrones o partículas alfa son la simplicidad en el tratamiento de la muestra y el carácter multielemental de la espectrometría gamma.

Al ser los rayos gamma partículas penetrantes, el esfuerzo en el acondicionamiento de las muestras a medir se reduce notablemente en relación con la medida de la actividad alfa y beta. El objeto de la reducción del tamaño de la muestra es aumentar la actividad específica de ésta y optimizar la geometría de recuento, con el consiguiente aumento de la eficiencia.

La alta resolución energética de los detectores de rayos gamma permite la identificación conclusiva de los radionúclidos medidos, así como la determinación simultánea de todos los que estén presentes en la muestra. El carácter multielemental de la espectrometría gamma le da a esta técnica analítica mayor potencia respecto a las determinaciones isotópicas por medidas α y/o β , que son selectivas.

Un aspecto importante a tener en cuenta respecto a la espectrometría gamma es la posibilidad de efectuar análisis no destructivos de las muestras. La naturaleza penetrante de los rayos gamma es, nuevamente, la responsable de esta opción, de primordial importancia en determinadas situaciones. El ejemplo más claro de estos casos lo constituye la medida de la radiactividad corporal de personas contaminadas por radionúclidos. Otro ejemplo curioso lo tenemos en la medida de la actividad de algunas piedras preciosas; sometiendo algunas gemas a irradiación neutrónica se puede conseguir un cambio en el color de las mismas, por la transmutación de elementos

contenidos a nivel de trazas, que puede hacer aumentar su valor comercial. En la figura 2.2.4 se muestra un espectro de un topacio azul en el que se puede apreciar la presencia de líneas fotónicas correspondientes a ^{22}Na , ^{46}Sc y ^{54}Mn . Todos estos radionúclidos se pueden formar en reacciones con neutrones rápidos:



Dentro del campo de la espectrometría gamma ambiental los dos tipos de detectores más ampliamente utilizados son los centelleadores de NaI(Tl) y los semiconductores de germanio. Tradicionalmente la comparación entre estos detectores atendía a la mayor eficiencia de los NaI(Tl) frente al mayor poder de resolución energética de los semiconductores.

La peor resolución energética de los detectores centelleadores de NaI(Tl) supone un gran inconveniente a la hora de medir muestras con varios emisores gamma o al medir emisores gamma con esquemas de desintegración complejos.

Un buen ejemplo de la diferencia de resolución entre estos dos tipos de detectores lo tenemos en la figura 2.2.5, en la que se muestran dos espectros de $^{108\text{m}}\text{Ag}$ y $^{110\text{m}}\text{Ag}$, recogido uno de ellos con un detector de NaI(Tl) y el otro con un Ge(Li) <PHILIPPOT-70>. La mejor resolución energética del detector de Ge(Li) permite distinguir diferentes líneas fotónicas de energías próximas, que dan lugar a un único pico en el espectro del detector de NaI(Tl). En este último espectro se aprecia que las líneas gamma con menor probabilidad de emisión quedan enmascaradas por las más intensas que estén en sus cercanías.

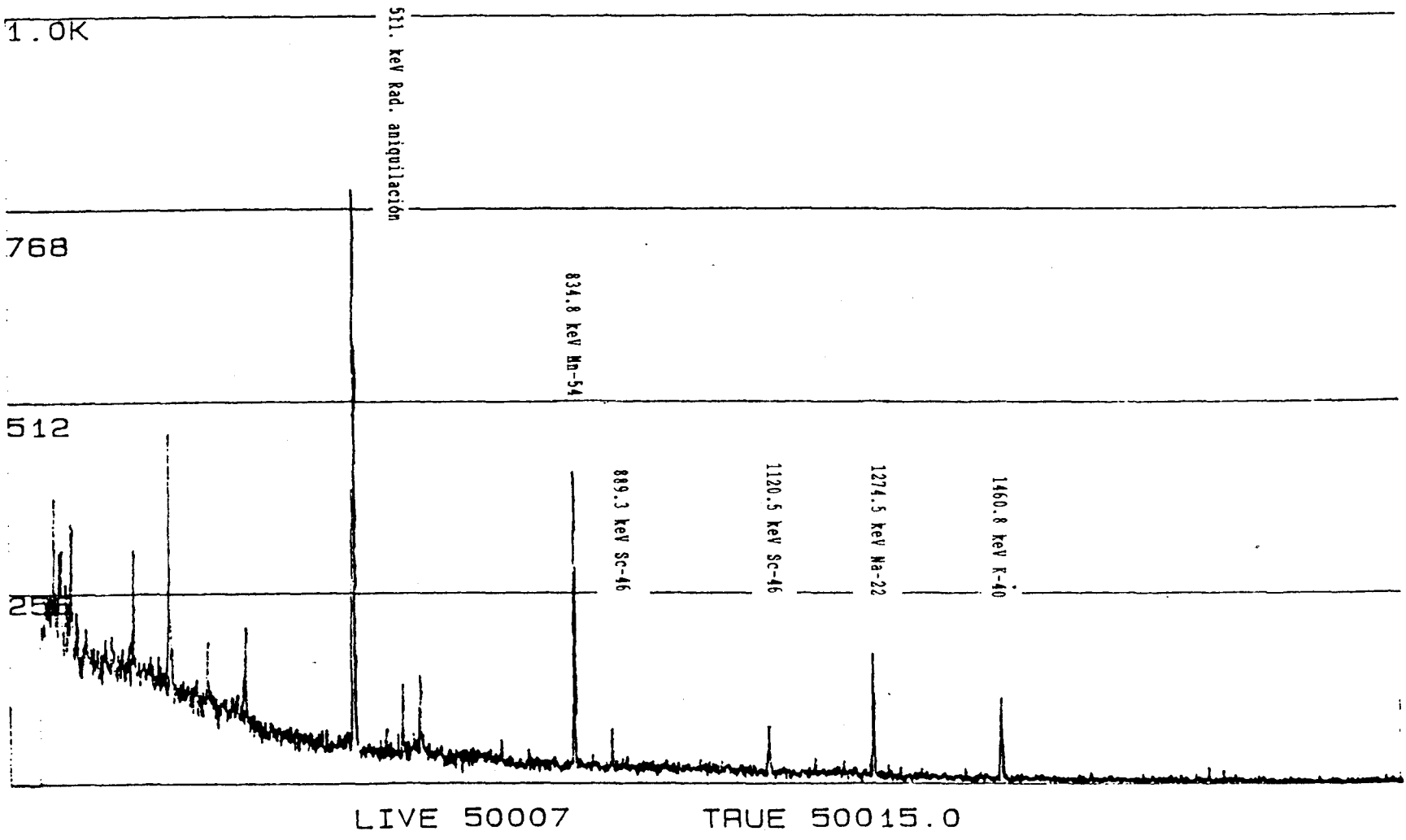


Figura 2.2.4 Espectro gamma de un topacio azul irradiado con neutrones rápidos, colectado con un detector de Ge(Li).

La cuestión de la mayor eficiencia de los detectores centelleadores respecto a los semiconductores de germanio ha ido, con el perfeccionamiento de las técnicas de fabricación de cristales de germanio y el progresivo aumento del tamaño de los mismos, perdiendo importancia. Hoy día existen espectrómetros de germanio con eficiencias relativas superiores al 100 %. En los campos en los que la superior eficiencia de los detectores centelleadores primaba sobre la mejor resolución de los de germanio, como en los contadores de radiactividad corporal (detectores Phoswich y NaI(Tl)), se tiende a la sustitución de aquellos por sistemas formados por varios detectores de germanio <LANE-84>.

Un último factor que representaba una ventaja para los detectores de NaI(Tl) sobre los de germanio es la necesidad de mantener a estos últimos a bajas temperaturas (por debajo de la temperatura de ebullición del nitrógeno líquido). Por esta razón, en las situaciones donde no es posible asegurar el suministro periódico de nitrógeno líquido (unidades móviles de medida de radiactividad, estaciones de muestreo en parajes inaccesibles, etc.) la elección de los espectrómetros centelleadores era obligada. En los últimos años varios fabricantes de detectores de germanio han desarrollado un sistema de enfriamiento para los detectores de germanio (por expansión de helio a temperatura ambiente) que hace innecesario el empleo de nitrógeno líquido.

En resumen, podemos afirmar que los espectrómetros de germanio han sustituido paulatinamente a los detectores de NaI(Tl) en la gran mayoría de las aplicaciones, como consecuencia del desarrollo tecnológico en la fabricación de detectores de germanio.

La utilización generalizada de la espectrometría gamma con detectores semiconductores va acompañada del empleo de programas de análisis de los espectros. Un espectro gamma consiste en un conjunto de un mínimo de 2048 números, correspondiente al número de cuentas almacenadas en cada canal; como se puede comprender, el análisis manual de los espectros es una tarea enormemente tediosa. La resolución automática de los espectros permite procesar un gran número de muestras en el laboratorio en intervalos cortos de tiempos, facilitando enormemente la utilización de esta técnica radioanalítica. Como muestra de ello señalemos que en el laboratorio de la Unidad de Control Radiológico Externo del Instituto de Protección Radiológica y Medio Ambiente del CIEMAT (UOCRE-PRYMA) se efectuaron más de 1200 análisis de espectrometría gamma durante los ocho últimos meses del año 1986, en el programa de vigilancia radiológica del accidente de la central nuclear de Chernobyl, permitiendo un seguimiento completo de la nube radiactiva que alcanzó España. Estos análisis se efectuaron con cuatro detectores de germanio. En la figura 2.2.6 se muestra un espectro de hortalizas recogidas el día 7 de mayo de 1986, en el que se pueden apreciar los fotopicos correspondientes a diferentes productos de fisión (^{95}Zr , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs y ^{140}La) junto al del ^{40}K de origen natural.

2.3 ESPECTROMETRIA GAMMA DE FOTONES DE BAJAS ENERGIAS.

Habitualmente el intervalo de energías en el que comunmente se trabaja en espectrometría gamma está comprendido entre 100 y 2000 keV; es en esta región donde se encuentra la mayor parte de las emisiones gamma de los radionúclidos. Sin embargo, esta memoria está dedicada a la medida de fotones con energías inferiores a 100 keV.

La medida de fotones con energías inferiores a los 100

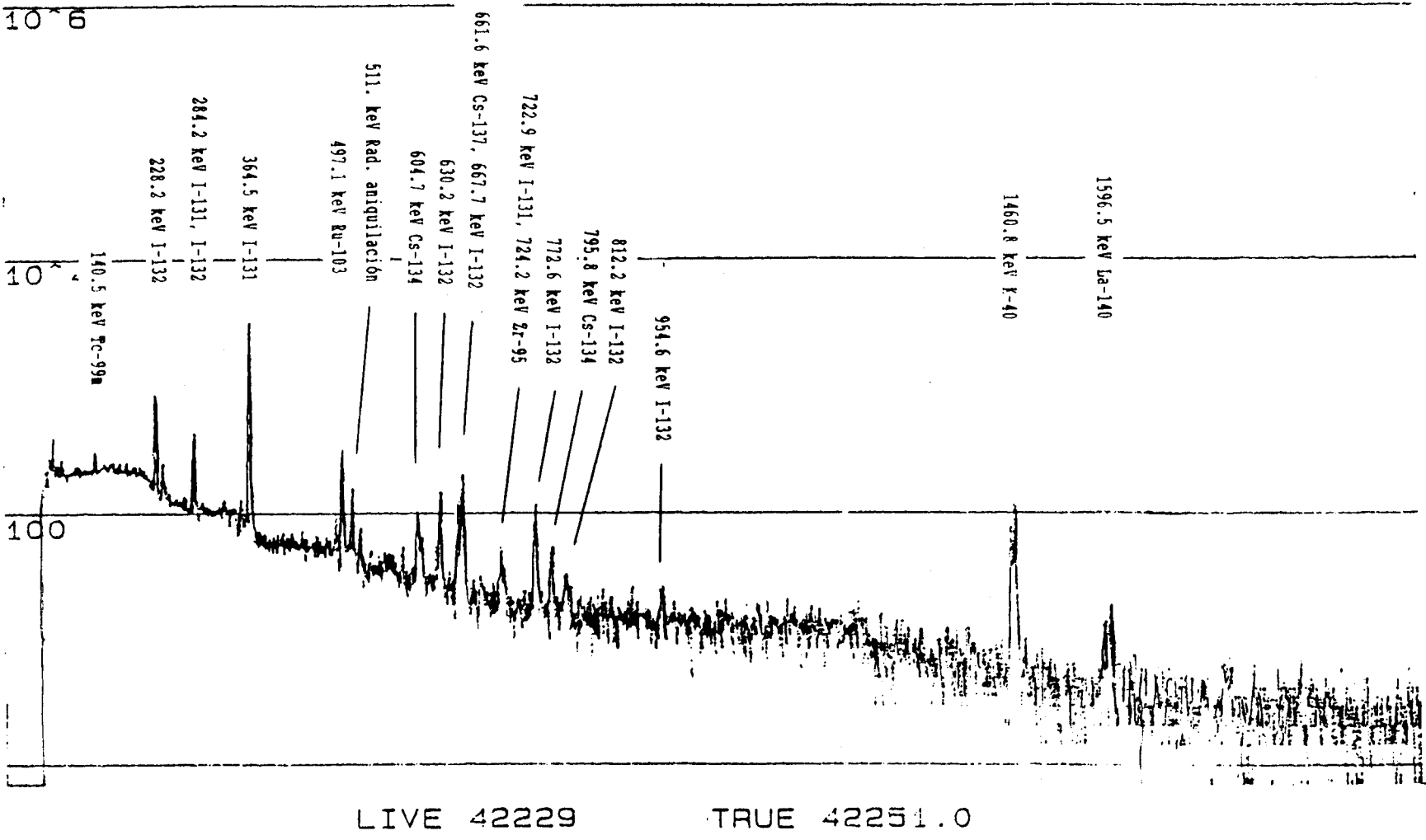


Figura 2.2.6 Espectro gamma de una muestra de lechuga recogida en Valencia el 7 de mayo de 1986, donde se aprecian diferentes fotopicos producidos por productos de fisión.

keV presenta una serie de problemas, motivados por su mayor probabilidad de interacción con la materia; recordemos que para energías inferiores a 100 keV aproximadamente la interacción por efecto fotoeléctrico es dominante, al ser la dependencia de su sección eficaz $\sigma_f \approx E^{-7/2}$.

En este apartado analizaremos las limitaciones de los espectrómetros de germanio convencionales en la región de bajas energías, y se estudiarán someramente los detectores empleados para la medida de rayos X y gamma de baja energía.

2.3.1 Limitaciones de los detectores convencionales en bajas energías.

En principio, la región que denominamos "Bajas energías" está comprendida entre 1 y 100 keV. Esta selección, un tanto arbitraria, se justifica por:

- La alta probabilidad de interacción de los fotones con estas energías hace necesario el empleo de detectores apropiados, y la consideración de la atenuación de éstos en la materia situada entre el punto de emisión y el volumen activo del detector.

- El rango de energías de los rayos X producidos por desexcitaciones atómicas está dentro de este intervalo.

Dentro del intervalo 1-100 keV podemos establecer dos regiones:

- Entre 1 y 30 keV, donde se encuentran la totalidad de los rayos X de las capas L y M, y parte de los de la capa K. En esta zona aparecen muy pocas emisiones gamma.

- Entre 30 y 100 keV, donde aparecen los rayos X

de la capa K para elementos con números atómicos superiores a 50 y un número apreciable de emisiones gamma.

Es en esta última región en la que estamos especialmente interesados; no obstante, en los preliminares se hará referencia a la primera, para no perder integridad en la presentación.

2.3.1.1 Aplicaciones de las medidas de fotones de baja energía.

Las principales aplicaciones de las medidas de fotones de baja energía pueden englobarse en dos categorías:

- Análisis de materiales por fluorescencia de rayos X, en los que se provoca la emisión de rayos X característicos de una sustancia al excitarla por diferentes métodos (por bombardeo de partículas cargadas en aceleradores, por ejemplo en PIXE, o fotones de mayor energía, con fuentes radiactivas,...). Su aplicación es la determinación de elementos estables.

- Determinación de radionúclidos emisores de fotones gamma de baja energía o de rayos X. La casuística es muy variada, dependiendo del origen del radionúclido emisor (natural o artificial) y del tipo de emisión. Entre otros se pueden citar los siguientes ejemplos:

Emisores gamma de baja energía naturales como ^{210}Pb (E=46.5 keV), ^{234}Th (E=63.3, 92.6 keV) y ^{230}Th (E=67.7 keV).

Emisores gamma de baja energía artificiales cual es el caso de ^{125}I (E=27.5, 31.0 keV), ^{129}I (E=29.6, 33.6, 39.6 keV).

Radionúclidos emisores β de baja energía con

emisión de rayos X, como ^{55}Fe ($E=5.9$ keV).

Actínidos como ^{238}U , ^{239}Pu y ^{240}Pu , en medidas no destructivas (elementos combustibles, medidas de radioactividad corporal).

2.3.1.2 Problemática de la detección de fotones blandos.

En la figura 2.3.1 representamos la variación de los coeficientes lineales de atenuación de los tres procesos de interacción de los fotones en función de la energía del fotón incidente para el germanio. Dos puntos importantes se pueden apreciar en la figura 2.3.1:

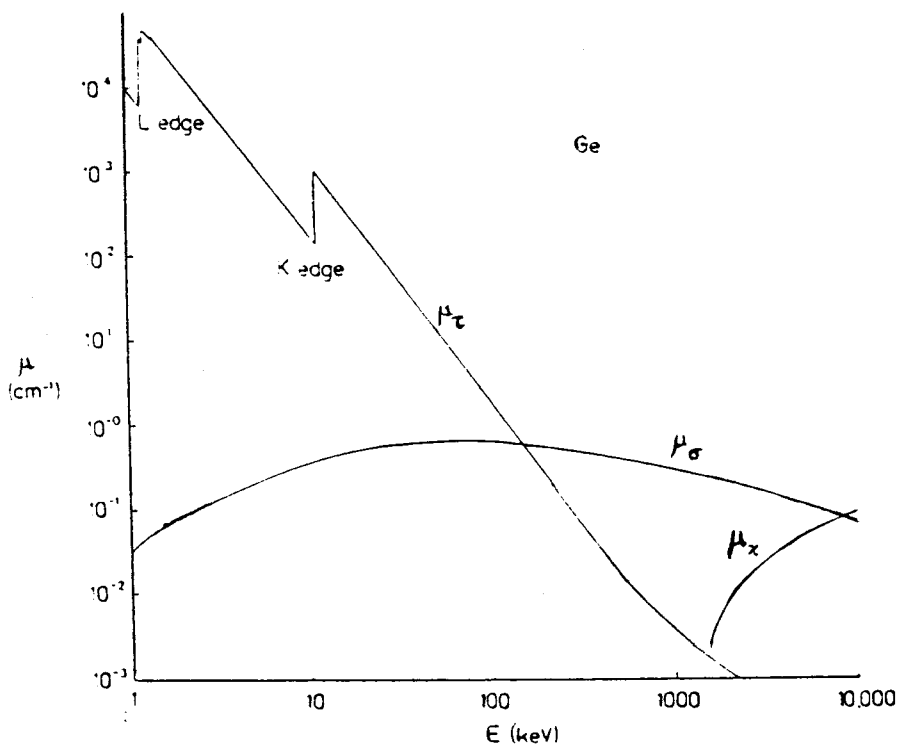


Figura 2.3.1 Coeficientes de atenuación lineal por efecto fotoeléctrico, dispersión Compton y producción de pares para el germanio. Tomado de <DEBERTIN-88>.

- La preponderancia del efecto fotoeléctrico frente a la dispersión Compton para energías inferiores a 100 keV.

- La mayor probabilidad de interacción de los fotones a medida que disminuye la energía (a excepción de los bordes correspondientes a las energías de los electrones de las capas K y L del germanio).

Como consecuencia de la mayor probabilidad de interacción de los fotones menos energéticos surge el problema de su atenuación antes de alcanzar el volumen activo del detector. En el caso de un detector de germanio convencional (nos referimos a detectores coaxiales de extremo cerrado, one closed end, de Ge(Li) y HpGe) podemos apuntar dos regiones donde se pierden fotones antes de llegar a la región activa:

- Ventana del detector, que sirve tanto para aislar el cristal semiconductor del exterior como para preservar la baja temperatura de funcionamiento. Esta ventana suele ser de aluminio, con espesores típicos entre 25 y 500 μm . Para las aplicaciones de bajas energías se emplean ventanas de berilio, con grosores entre 7.5 y 500 μm . En la tabla 2.3.1 se muestran los factores de transmisión de fotones de varias energías a través de ventanas de berilio y aluminio de distintos espesores. La transmisión de fotones a través de ventanas de berilio es mayor que en el caso del aluminio, incluso para espesores de este último más pequeños. Esto es debido a la dependencia de la sección eficaz del efecto fotoeléctrico con el número atómico, $\sigma_f \approx Z^{4.5}$.

- Capa muerta, dead layer, en la superficie externa del detector, formada por el contacto eléctrico de la región activa. En los detectores coaxiales de germanio dopados con litio,

	ESPESOR	ENERGIA (keV)			
	(μm)	1.	10.	20.	50.
Be	7.5	0.45	0.999	1.000	1.000
	12.5	0.27	0.999	0.999	1.000
	25.	0.071	0.997	0.999	0.999
	50.	0.005	0.994	0.998	0.999
Z=4	125.	0.000	0.986	0.995	0.996
	250.	0.000	0.970	0.990	0.993
	500.	0.000	0.940	0.980	0.986
Al	25.	0.000	0.84	0.98	0.998
	50.	0.000	0.71	0.96	0.995
	125.	0.000	0.42	0.89	0.988
Z=13	250.	0.000	0.17	0.80	0.98
	500.	0.000	0.03	0.63	0.95

Tabla 2.3.1 Factor de transmisión de fotones para ventanas de berilio y aluminio de diferentes espesores. Tomado de <DEBERTIN-88> pg86.

Ge(Li), y germanio hiperpuro convencionales, HpGe tipo p, el contacto exterior, n⁺ al ser el núcleo de germanio de tipo p (ésto es, con impurezas residuales de tipo p), está formado por difusión de litio a alta temperatura, teniendo grosores del orden de 300 μm . La existencia de esta capa muerta, conduce a una pérdida sustancial de eficiencia para energías por debajo de los 60 keV en los detectores HpGe tipo p, y aun más acusada en el caso de los Ge(Li). Los detectores coaxiales de extremo abierto (true coaxial) no presentan este inconveniente, pero la presencia de

canales superficiales y el campo en el borde empobrecen la recolección de carga y afecta a las prestaciones del detector, en especial en bajas energías.

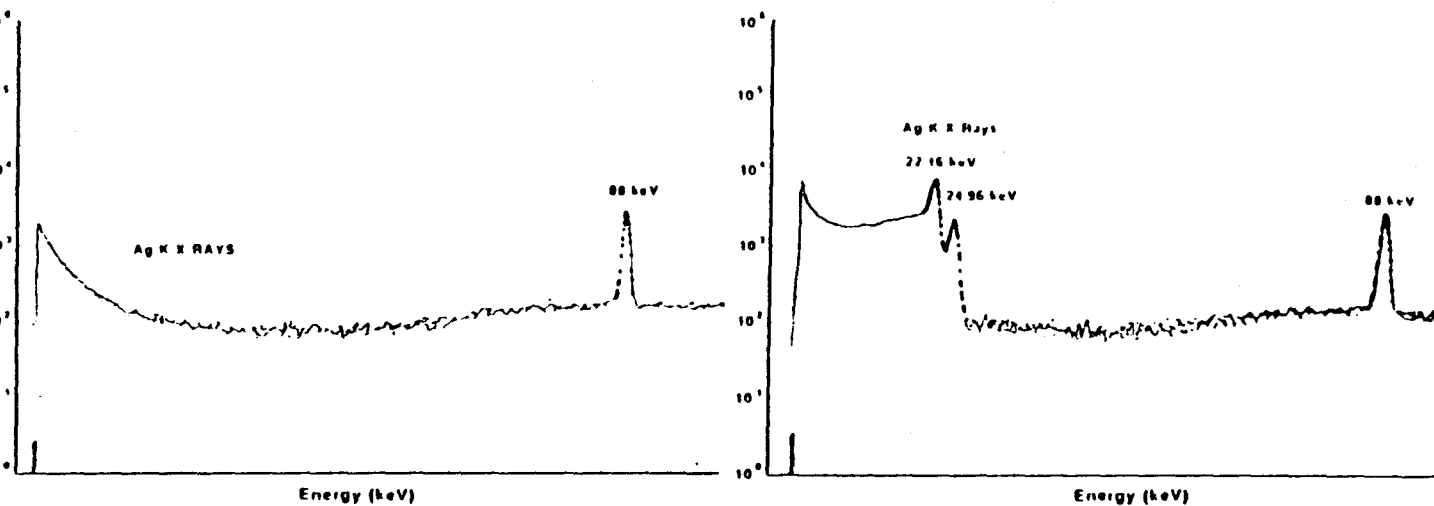
2.3.1.3 Ejemplos prácticos.

A modo de ejemplo sobre las limitaciones de los detectores de germanio convencionales en bajas energías se presentan en la figura 2.3.2 los espectros de una muestra de ^{109}Cd colectados con cuatro detectores de germanio: coaxial HpGe tipo p, coaxial de extremo abierto Ge(Li), coaxial HpGe tipo n y HpGe plano, tomados de <RAUNDORF-79>.

En todos los espectros aparece la línea gamma de 88.04 keV. Sin embargo, los rayos X K_{α} y K_{β} (22.15 y 24.95 keV) no son visibles en el espectro recogido con el detector coaxial HpGe tipo p, al ser absorbidos en la capa muerta (cuyo grosor estimado es de 0.3 mm). Si el detector fuese de Ge(Li) la respuesta a los rayos X sería aun peor, ya que el espesor de la capa de difusión de litio es mayor, entre 0.5 y 1 mm.

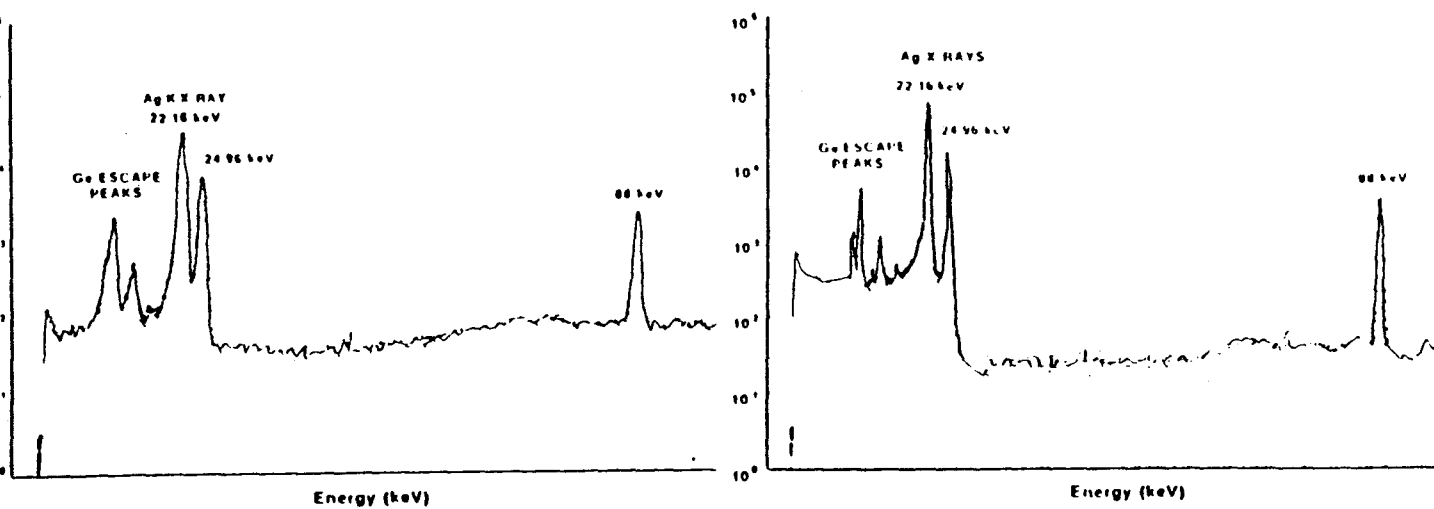
En el caso del detector coaxial de extremo abierto se distinguen las dos líneas de rayos X, si bien sobre un fondo continuo bastante elevado. La resolución energética no es muy buena, como se desprende de la anchura de los picos correspondientes a los rayos X.

Los espectros correspondientes al detector coaxial HpGe tipo n y al detector HpGe plano son bastante similares. En ambos espectros aparecen nítidamente las líneas correspondientes a los rayos X y a la emisión gamma; así mismo, se observa la presencia de los picos de escape del germanio. Un último comentario a la figura 2.3.2 es la mejor resolución energética que presenta el detector plano respecto al coaxial HpGe tipo n. Sobre este punto se discutirá más ampliamente en el apartado 3.3.



A

B



C

D

Figura 2.3.2 Espectros de rayos X y gamma de una fuente de ^{109}Cd colectados por A: detector coaxial HpGe tipo p; B: detector coaxial de extremo abierto Ge(Li); C: detector coaxial HpGe tipo n; D: detector HpGe plano <RAUNDORF-79>.

2.3.2 Detectores de rayos X y gamma de bajas energías.

La medida de fotones con energías inferiores a 100 keV requiere el empleo de detectores apropiados, como se discutió en el apartado anterior. En esta sección haremos una somera reseña de los detectores utilizados en este tipo de medidas.

2.3.2.1 Detectores proporcionales.

Los detectores proporcionales son los primeros espectrómetros utilizados para la medida de fotones de bajas energías (en 1948 Hanna et al. miden el espectro de rayos X asociado con la captura K en el ^{37}Ar <HANNA-49>). Debido a la pequeña densidad del medio material activo, el gas de llenado ha de tener un alto número atómico con el fin de aumentar la probabilidad de interacción de los fotones. El gas empleado más comunmente es el xenón, con número atómico $Z=54$, en los detectores de circuito cerrado, y una mezcla de argón (90%) y metano en los de circuito abierto.

La principal característica de los detectores proporcionales es la baja densidad del medio activo, y de ella se derivan sus ventajas e inconvenientes:

- La eficiencia de recuento decrece rápidamente al aumentar la energía de los fotones. Las eficiencias intrínsecas siguientes, pertenecientes a un detector proporcional de xenón de 10.5 cm de largo y 4.44 cm de diámetro <ISRAEL-71>, ilustran lo anterior:

$E < 10 \text{ keV}$	$\text{eff}_i \approx 100\%$
$E = 35 \text{ keV}$	$\text{eff}_i \approx 10\%$
$E = 100 \text{ keV}$	$\text{eff}_i \approx 1\%$

- Presentan importantes picos de escape de rayos

X cuando los fotones incidentes tienen energías superiores al borde K del xenón, 34.6 keV.

- La resolución energética es moderadamente buena (FWHM= 1.9 keV, E= 5.9 keV ⁵⁵Fe; <CROUTHAMEL-70>).

- El continuo Compton es reducido.

En resumen podemos señalar que el intervalo de aplicabilidad de los detectores proporcionales está comprendido entre las energías fotónicas de 0.27 (borde K del carbono) y 35 keV.

2.3.2.2 Detectores centelleadores.

Los cristales centelleadores de NaI(Tl) y CsI(Tl) se han utilizado en espectrometría gamma tradicionalmente. Su empleo para energías inferiores a 100 keV está limitada por su pobre resolución energética, (Berger y Goans señalan una resolución del 35% en 17 keV para un detector phoswich típico <BERGER-81>), y por la relativamente alta aparición de líneas de escape de rayos X (el rendimiento de fluorescencia del yodo, número de fotones K emitidos por vacante, es alto, 0.87).

La principal ventaja que presentan los espectrómetros centelleadores en bajas energías es su elevada eficiencia. Por este motivo han sido utilizados tradicionalmente en las medidas de radioactividad in vivo. La disposición PHOSWICH (de PHOSphor sandWICH) antes citada, con dos cristales de CsI(Tl) y NaI(Tl) acoplados óptimamente, se utiliza en los contadores de radioactividad corporal para la detección de actínidos (uranio, americio e isótopos de plutonio) <SHAPIRO-74>, <ANDERSON-82>, si bien se tiende hacia su sustitución por detectores de germanio.

2.3.2.3 Detectores semiconductores.

Los detectores semiconductores son los más empleados

en la espectrometría de fotones, tanto de alta como de baja energía. Dentro de los espectrómetros semiconductores apropiados para bajas energías se pueden diferenciar los de silicio y los de germanio, que describimos a continuación. El empleo de otros materiales semiconductores, como el HgI_2 , está restringido a aplicaciones especiales <HERNANDEZ-84>.

2.3.2.3.1 Detectores de Si(Li).

Los primeros espectrómetros semiconductores de fotones fueron los detectores de Si(Li). Las principales características de los detectores de Si(Li) son:

- Excelente resolución energética (FWHM= 0.37 keV $E= 5.9$ keV ^{55}Fe ; <CROUTHAMEL-70>; mirar tabla 2.3.2 para datos más recientes).

- Al ser el rendimiento de fluorescencia del silicio bajo, 0.05, no presentan problemas de picos de escape de rayos X.

- La eficiencia de recuento disminuye fuertemente para energías superiores a 15 keV, debido al pequeño número atómico del silicio, $Z=14$. Como ejemplo presentamos las eficiencias intrínsecas de un detector de Si(Li) de 30mm^2 de área activa y 3 mm de grosor <ISRAEL-71>:

$E < 15$ keV	$\epsilon_{\text{eff}_i} \approx 100\%$
$E = 60$ keV	$\epsilon_{\text{eff}_i} \approx 10\%$
$E = 100$ keV	$\epsilon_{\text{eff}_i} \approx 1\%$

La aplicabilidad de los detectores de Si(Li) está reducida al intervalo de energías entre 1 y 50 keV. Como ejemplo de la respuesta de los detectores de Si(Li) se muestra en la figura 2.3.2 una comparación entre los espectros de rayos X de plata colectados por un detector proporcional de xenón, un

crystal centelleador de NaI(Tl) y un detector de Si(Li).

El empleo de detectores de Si(Li) está actualmente muy extendido, tanto para medidas de fluorescencia de rayos X, <MATSUDA-75>, como para determinación de radionúclidos: ^{55}Fe <JENKINS-74>, <VIDAL QUADRAS-87> y transuránidos <STRAUSS-86>. También se han descritos sistemas de anticoincidencia para este tipo de detectores <PRUSSIN-86>.

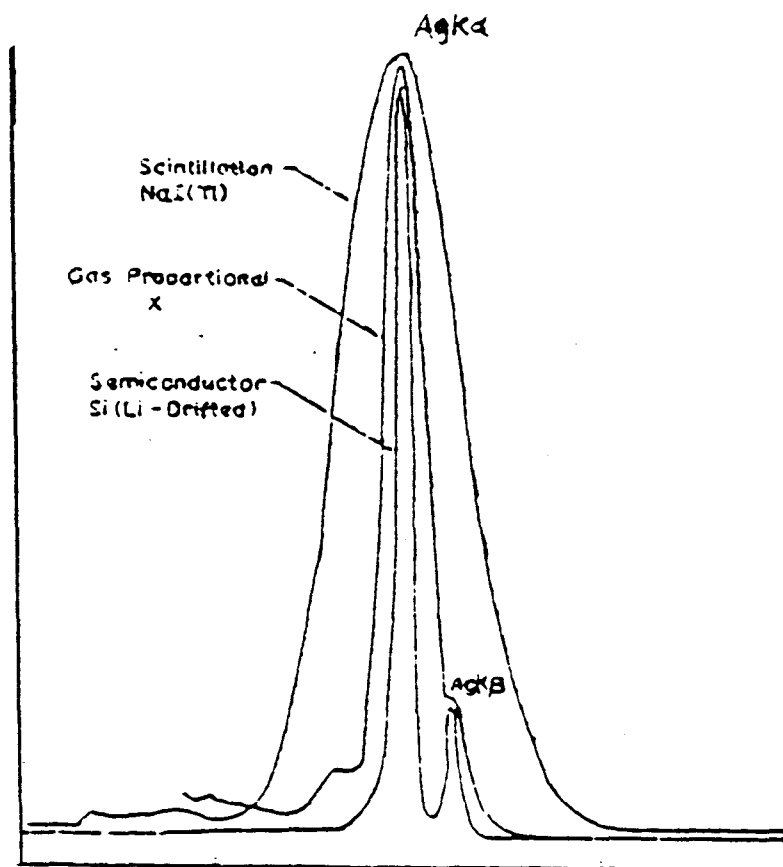


Figura 2.3.3 Comparación de los espectros de rayos X de la plata medidos con un detector proporcional, uno de NaI(Tl) y un Si(Li). Tomado de <MUGGLETON-72>.

2.3.2.3.2 Detectores de Ge planos.

El volumen activo de los detectores de germanio planos está constituido por un cristal de forma cilíndrica. Los primeros detectores de germanio tenían esta disposición, por la mayor

facilidad de su construcción. En estos detectores se combina una delgada ventana de berilio con una pequeña región muerta, de unos 200 a 500 μm .

Las principales características de los detectores de germanio planos son:

- Buena resolución energética en bajas energías (FWHM= 0.28 keV E= 5.9 keV, FWHM= 0.53 keV E= 122 keV <MATSUDA-75>; mirar también la tabla 2.3.2).

- La eficiencia empieza a descender apreciablemente a partir de los 100 keV; sin embargo, en el intervalo 10-300 keV es moderadamente buena:

E < 10 keV	eff _i \approx 100%
E = 40 keV	eff _i \approx 90%
E = 300 keV	eff _i \approx 20%

2.3.2.3.3 Detectores HpGe coaxiales tipo n.

Hasta finales de los años 70 todos los detectores coaxiales de germanio hiperpuro estaban fabricados con material de tipo p (la impureza residual del germanio estaba constituida por átomos aceptores, principalmente aluminio y boro). En estos cristales los contactos eléctricos se han de disponer de forma que el exterior es n⁺ mientras que el interior es p⁺. Como se comentó en la sección 2.3.1.1, el contacto exterior n⁺ se forma por difusión de litio a alta temperatura, resultando en una zona muerta de un espesor considerable, 300 μm . La capa de difusión de litio limita la aplicación de estos detectores hasta energías de 60 keV. Sin embargo, con la fabricación de cristales de germanio de alta pureza en los que la impureza residual es donante, fundamentalmente fósforo, se consigue eliminar este problema. En efecto, la configuración de los electrodos en estos cristales es opuesta a las de los cristales de tipo p: el contacto exterior es el p⁺, que se fabrica por implantación

iónica de átomos de boro, presentando un espesor considerablemente inferior, $\approx 0.3 \mu\text{m}$ <PEHL-77>.

En principio, es posible invertir los contactos eléctricos en un detector de germanio de tipo p, de forma que el electrodo p^+ quede situado en el exterior. Sin embargo, la configuración del campo eléctrico en el detector se modifica sensiblemente <RAUNDORF-79>:

Por una parte se necesitaría un mayor voltaje para conseguir el mismo volumen activo que en un detector con geometría convencional.

El campo eléctrico sería más intenso en el interior del detector, región donde son menos probables las interacciones de los fotones, con la consiguiente pérdida de eficiencia.

En la figura 2.3.4 se muestra un esquema con la configuración de los detectores coaxiales de germanio hiperpuro de tipos p y n.

Con la configuración invertida de los electrodos en los detectores coaxiales de germanio hiperpuros de tipo n se consigue una ventaja adicional sobre los detectores de tipo p: una mayor resistencia al daño por radiación. Como es bien sabido, el principal defecto producido por la radiación, neutrones rápidos y partículas cargadas energéticas, en los cristales de germanio es la formación de centros de captura de huecos <KRANER-68>, que deterioran la colección de estos portadores de carga. Con la configuración de electrodos invertida de un detector de tipo n los huecos son recogidos por el contacto exterior p^+ . Al haber un mayor volumen activo dentro de una distancia δR de la superficie exterior que de la interior, se concluye que los huecos tendrán que recorrer distancias menores para alcanzar el electrodo en los detectores tipo n que en los de tipo p, con la consiguiente disminución de la probabilidad de quedar atrapados

en los centros de captura que pudiese haber. Este hecho ha permitido estudiar la utilización de estos detectores tanto en campos intensos de radiación como en misiones espaciales de larga duración <PEHL-79>.

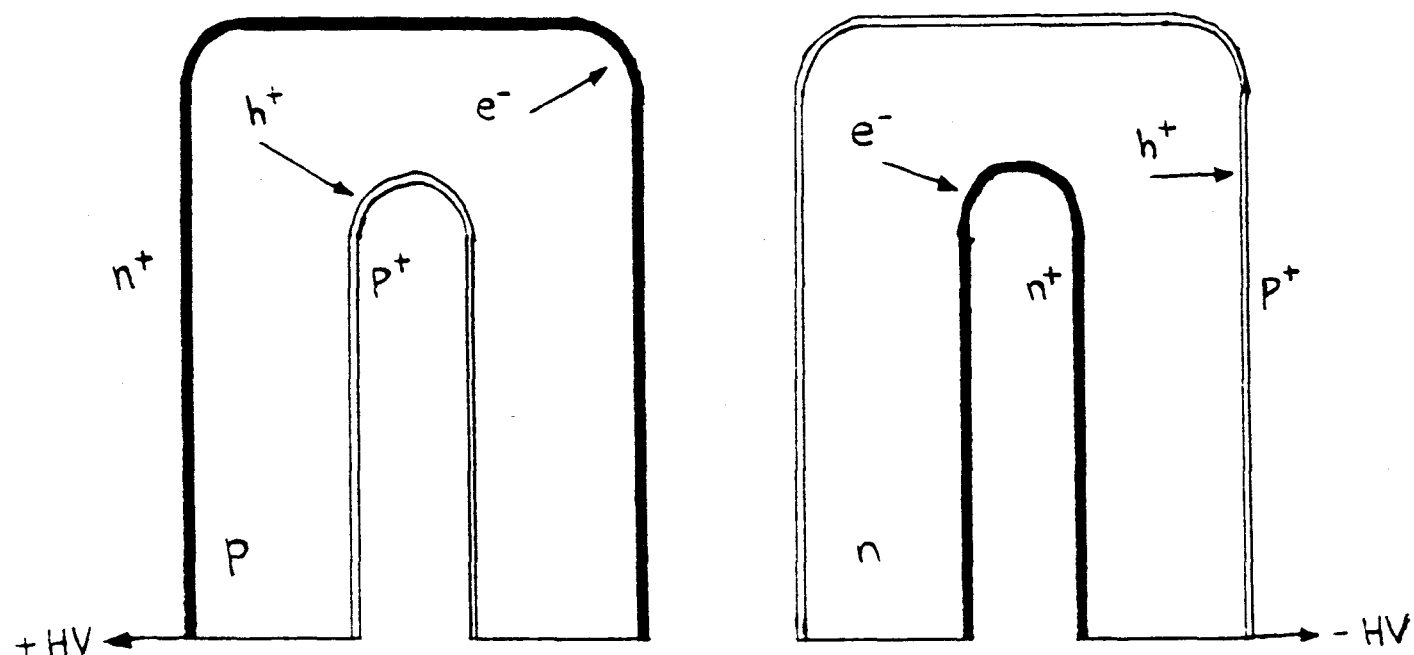


Figura 2.3.4 Esquema de la disposición de los detectores coaxiales de germanio hiperpuro de tipos p y n.

Los detectores coaxiales de HpGe tipo n mantienen las prestaciones de los detectores coaxiales de Ge(Li) y HpGe tipo p en la zona de altas energías. Su principal característica distintiva es su idoneidad para medir fotones con energías de hasta 5-10 keV.

La característica más sobresaliente de los detectores semiconductores es su excelente resolución energética. En la tabla 2.3.2 se muestran las resoluciones típicas de estos

detectores para diferentes tamaños <DEBERTIN-88>.

TIPO	TAMAÑO	FWHM		
		5.9 keV	122 keV	1333 keV
Si(Li)	Area cm ²			
	0.12	0.16-0.17		
	0.28	0.17-0.18		
	0.80	0.18-0.19		
	2.00	0.22-0.25		
Ge planos				
	1.13	0.145	0.48-0.55	
	3.14	0.18-0.24	0.57-0.49	
	8.04	0.20-0.29	0.50-0.59	
	19.6	0.30-0.46	0.54-0.72	
	81.7	0.54-0.62	0.72-0.77	
Ge	eff %			
coaxial	10	0.66-0.74	0.80-1.0	1.8-2.0
tipo n	20	0.69-0.79	0.85-1.0	1.8-2.0
	30	0.72-0.84	0.90-1.0	1.9-2.2

Tabla 2.3.2 Tamaños típicos y resolución de los detectores semiconductores. Tomado de <DEBERTIN-88>.

3. PUESTA A PUNTO DE SISTEMAS DE ESPECTROMETRIA GAMMA DE BAJAS ENERGIAS.

En el laboratorio de radioanálisis del Instituto PRYMA existe una amplia experiencia en la medida de fotones de bajas energías; ya en 1970 se disponía de un detector de Ge(Li) tipo planar, que se aplicó al análisis por activación neutrónica <CLEMENTE-78>. En este capítulo se describirán los dos sistemas detectores que han sido empleados para la realización de esta memoria, junto con sus calibraciones y los métodos de corrección de los efectos de autoabsorción.

3.1 SISTEMA LEPS.

3.1.1 Descripción del sistema LEPS.

El sistema de espectrometría gamma de bajas energías LEPS (Low Energy Photon Spectrometer), diseñado y montado en nuestro laboratorio, está formado por dos detectores semiconductores de germanio hiperpuro, HpGe, de tipo plano, idénticos, dispuestos en oposición. Las características principales de los detectores se muestran en la tabla 3.1.1. Es destacable que la ventana de estos detectores es de berilio en lugar de aluminio, que es el material normalmente utilizado. Este cambio tiene por objeto reducir en lo posible la atenuación de los fotones de más baja energía en la ventana del detector, al emplear un material con menor número atómico. Por contra, las ventanas de berilio son mucho más frágiles que las de aluminio, por lo que se deben extremar las precauciones.

El material de partida para la fabricación de los detectores es un monocristal de germanio muy puro, obtenido por el método de crecimiento de Czochralski. El contacto n^+ se forma por difusión de litio a alta temperatura, mientras que el contacto p^+ es de barrera superficial, conseguido por deposición al vacío de oro.

Area activa		1000 mm ²
Diámetro activo		36 mm
Grosor zona activa		13 mm
Grosor ventana Be		0.4 mm
Distancia ventana-zona activa		5 mm
Tensión de trabajo		-1500 V
Resolución (122 keV Co-57)	Garantizada	630 eV
	Medida	520 eV

Tabla 3.1.1 Características técnicas de los detectores HpGe del sistema LEPS.

La muestra a medir se sitúa entre los dos detectores, de manera que el ángulo sólido que subtende la misma respecto de los dos detectores sea máximo.

Los dos detectores están rodeados por una capa de hierro viejo de bajo fondo, fabricado con anterioridad a 1945. Esta capa tiene 103 mm de espesor, y actúa como blindaje pasivo frente a la radiación gamma ambiental. En la figura 3.1.1 se muestra un esquema de la disposición de los detectores y del blindaje, observándose también la ubicación de la muestra.

La muestra se introduce entre los dos detectores con un sistema de cambio de muestra consistente en dos discos de acero inoxidable, uno de ellos fijo sobre el que se desliza otro móvil que arrastra a la muestra. El disco móvil es accionado por un motor eléctrico. El sistema de cambio de muestras tiene la posibilidad de ser programado desde un ordenador; sin embargo, al ser los tiempos de medida presumiblemente largos, no se ha desarrollado dicha posibilidad.

Los dos detectores, con sus recipientes dewar, el blindaje de hierro y el sistema de cambio de muestras van montados sobre un armazón de acero, que descansa a su vez sobre

cuatro ruedas de goma. El objeto de las mismas no sólo es el de facilitar el movimiento del sistema, sino que sirven también para aislar al mismo del suelo del laboratorio y evitar la aparición de ruidos provocados por vibraciones. Así mismo, todos los puntos de agarre y sujeción de los detectores y sus recipientes devar con el armazón metálico se recubrieron con una capa de goma, con objeto de minimizar los ruidos por microfonía.

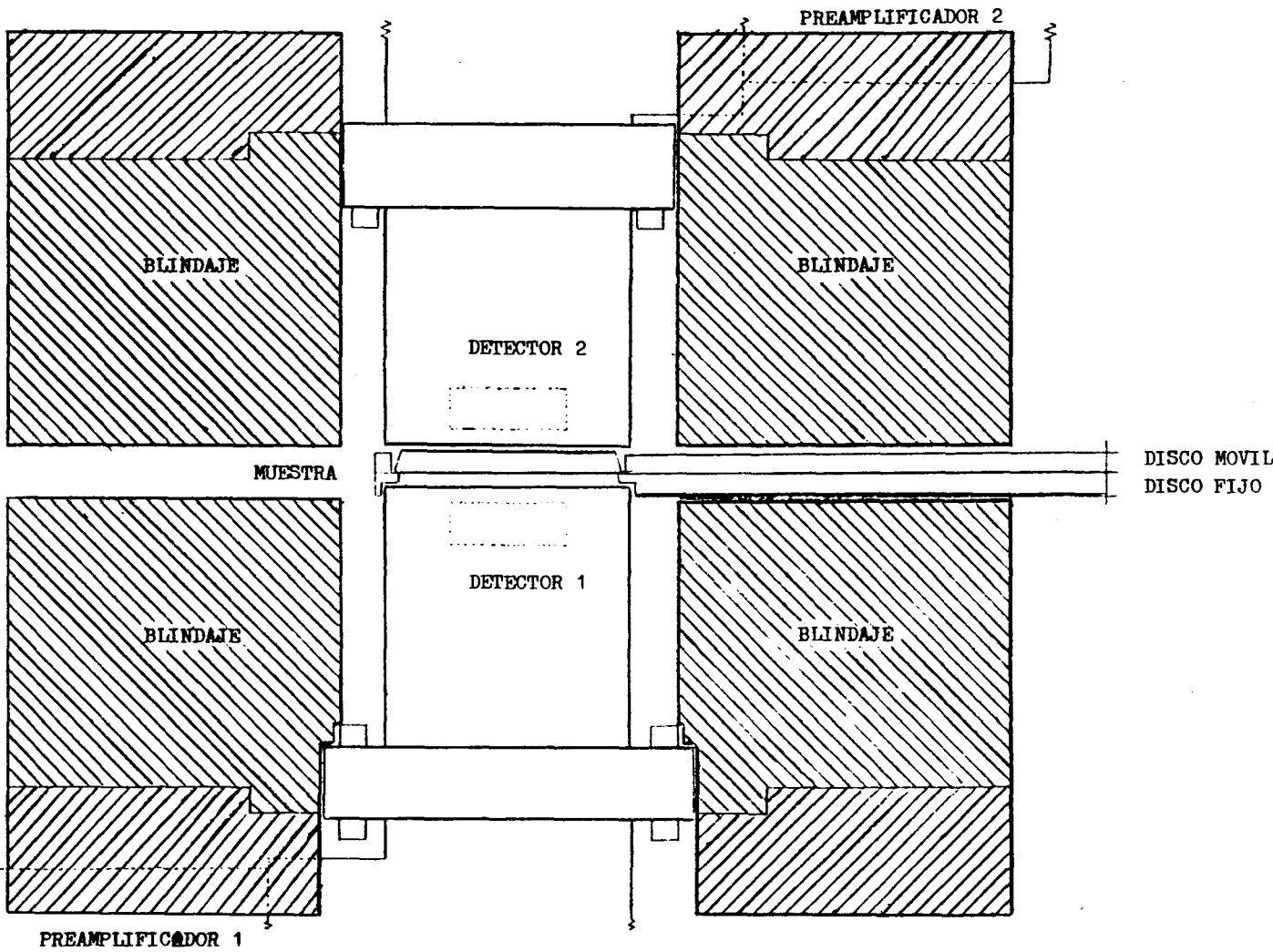


Figura 3.1.1 Esquema de la disposición de los detectores y del blindaje del sistema LEPS.

Cada uno de los detectores va conectado a una cadena electrónica independiente, consistente en preamplificador (PA), amplificador lineal (AMP) y convertidor analógico digital (ADC). Las señales de salida de los ADC's se envían a un analizador multicanal (MCA), donde se acumulan en dos grupos distintos de 2048 canales cada uno. En la figura 3.1.2 se muestra un diagrama de bloques del sistema LEPS y su electrónica asociada, mostrándose los modelos de los distintos componentes.

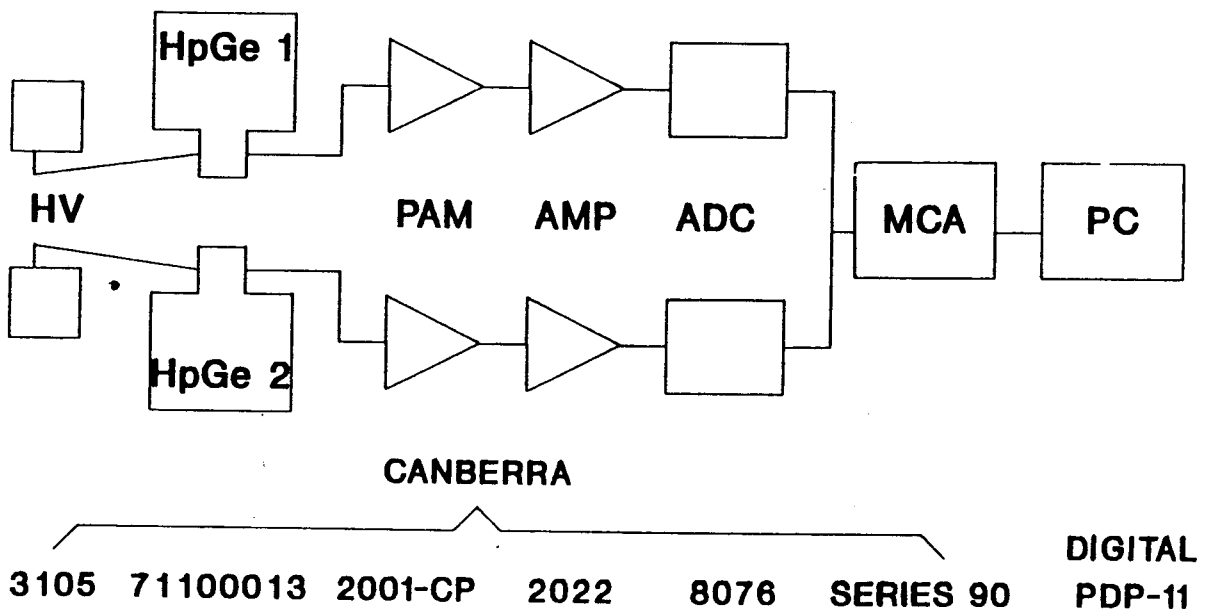


Figura 3.1.2 Diagrama de los componentes de la cadena electrónica del sistema LEPS.

3.1.2 Programa de suma de espectros.

Con esta configuración se obtienen simultáneamente dos espectros de la muestra, colectados cada uno de ellos por un detector. La idea básica de este sistema de detección es aumentar la eficiencia de detección obteniendo un espectro "sintético" sumando los dos espectros parciales colectados por cada detector independientemente. De esta forma la eficiencia de contaje será el doble de la de cada detector por separado.

Antes de pretender realizar la suma de los espectros es obvio que los dos detectores han de tener curvas de calibración energía-canal muy similares. Esto se consigue ajustando adecuadamente la ganancia de amplificación y el offset del ADC.

La suma de los espectros se puede realizar directamente con el multicanal, utilizando la opción STRIP; de esta manera se suman los espectros canal a canal (el contenido del canal n del espectro suma será simplemente la suma de las cuentas acumuladas en el canal n de los dos espectros colectados). Sin embargo, este procedimiento de obtener el espectro suma tiene un grave inconveniente: los dos detectores han de tener exactamente la misma calibración en energías, de forma que los picos de los dos espectros aparezcan en los mismos canales. Si esto no sucediese se produciría una pérdida de resolución en el espectro suma, con la obtención de picos más anchos, o incluso dobles. Esta deformación del espectro suma dificultará el posterior análisis del mismo.

Dada la imposibilidad práctica de ajustar electrónicamente los parámetros de los dos detectores de forma exacta y, además, estable en el tiempo se decidió realizar un tratamiento previo de normalización de los datos de cada espectro antes de proceder a la suma de los mismos. Para esta labor se ha desarrollado en nuestro laboratorio el programa LULEPS, que pasamos a describir <ROMERO-86a>, <MARTINEZ-86>.

3.1.2.1. Descripción del programa.

El programa LULEPS está escrito en lenguaje FORTRAN IV, y está estructurado en subrutinas, de forma que cada acción específica dentro del programa se realiza mediante una subrutina. Con ello se consigue clarificar y agilizar la estructura del programa. En la figura 3.1.3 se muestra el diagrama de flujo del programa LULEPS.

El funcionamiento del programa LULEPS es como sigue:

1) Inicialización de las variables.

2) Lectura de los datos del espectro del detector 1. El programa lee los datos de análisis de altura de pulsos del fichero que contiene el espectro (y que ha sido creado al transferir un espectro del MCA al ordenador con los programas SPECTRAN-F).

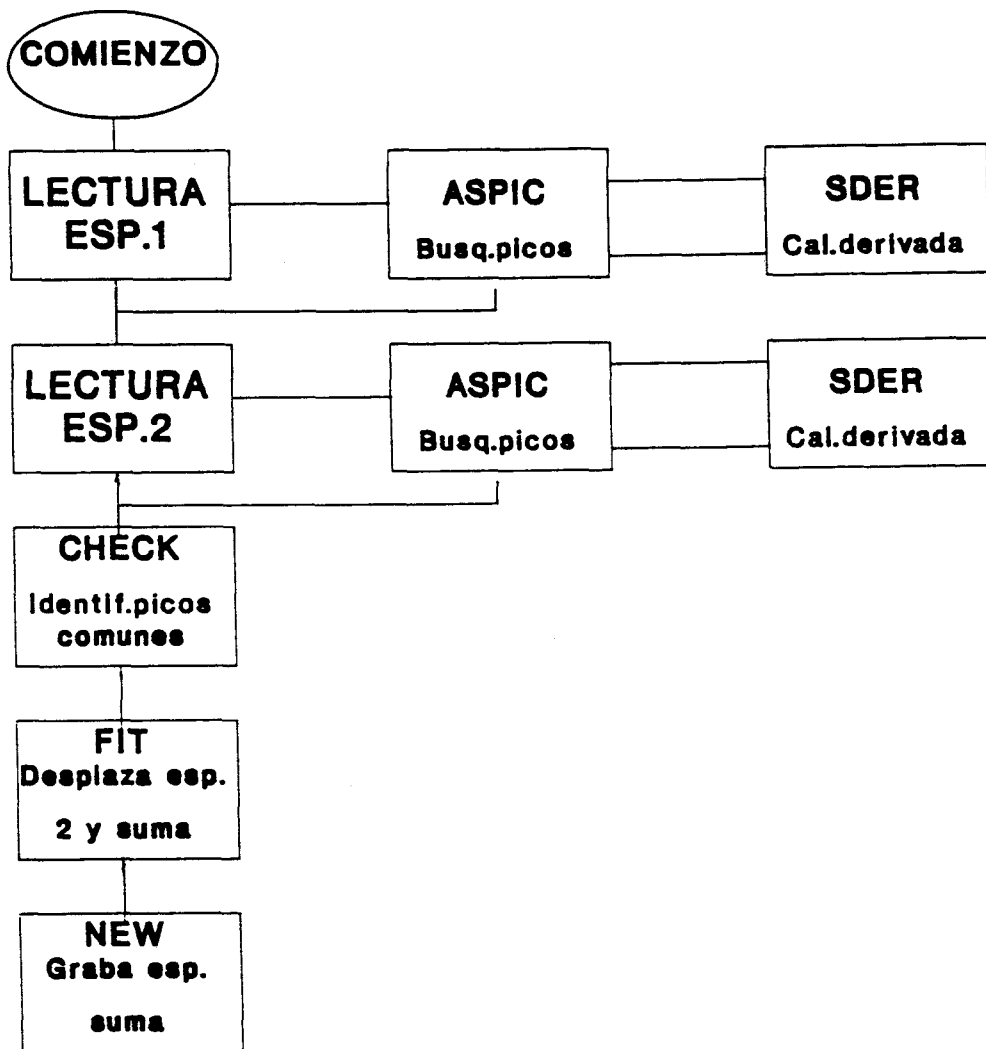


Figura 3.1.3 Diagrama de flujo del programa de suma de espectros LULEPS.

3) Localización de los picos del espectro 1. Esta labor la llevan a cabo las subrutinas ASPIC y SDER. La subrutina SDER realiza un suavizado del espectro en intervalos de cinco canales, con objeto de eliminar la dispersión estadística de los datos <TRAVESI-75>. Con el espectro suavizado calcula la primera derivada en cada punto, devolviendo el signo de ésta a la subrutina ASPIC. El suavizado y la derivación del espectro se efectúan siguiendo el método de la función de convolución, a partir de los algoritmos <SAVITZKY-64>:

$$S_i = \frac{-3C_{i-2} + 12C_{i-1} + 17C_i + 12C_{i+1} - 3C_{i+2}}{35} \quad [3.1]$$

$$D_i = \frac{-2C_{i-2} - C_{i-1} + C_{i+1} + 2C_{i+2}}{10} \quad [3.2]$$

donde C_i es el contenido del canal i del espectro original, S_i es el valor del canal i del espectro suavizado y D_i el valor de la primera derivada en el canal i . La subrutina ASPIC tiene la función de localizar los picos que aparecen en el espectro. Para ello sigue el criterio de buscar regiones donde exista un mínimo de cinco derivadas positivas seguido por un mínimo de cinco derivadas negativas. El número de canales mínimo donde debe aparecer un pico puede ser modificado, para poder ajustarse a la relación keV/canal elegida en los detectores.

4) Lectura de los datos del espectro 2.

5) Localización de los picos del espectro 2.

6) Evaluación de las diferencias entre los dos espectros. La subrutina CHECK comprueba, tomando como referencia el espectro 1, que todos los picos identificados en él aparecen también en el segundo espectro. Si en el segundo espectro no se encuentra un pico, o bien si existe un pico de más, lo desecha a la hora de realizar el ajuste.

espectros para considerarlos equivalentes es de ± 5 para espectros de 2048 canales (al ser la relación energía canal entre 0.10 y 0.15 keV/canal, el margen de cinco canales evita que se consideren equivalentes picos próximos). Con los picos comunes en los dos espectros se realiza una ordenación por número de canales crecientes y calcula el desplazamiento entre los máximos de éstos.

7) Normalización del segundo espectro. Con los datos de salida de la subrutina CHECK (posición de los picos comunes y desplazamiento entre ellos), la subrutina FIT hace coincidir los máximos de los picos seleccionados del espectro 2 con las posiciones de los máximos del primer espectro, moviendo trozos del espectro 2. El desplazamiento que se realiza en el segundo espectro tiene lugar en la región comprendida entre 10 canales antes del máximo del pico en cuestión y 10 canales antes del siguiente pico seleccionado. Es importante señalar que los espectros que se suman son los originales, no los suavizados. Una vez que los máximos de los dos picos coinciden se procede a sumar canal a canal los espectros.

8) Por último, la subrutina NEW graba los datos calculados del espectro suma en un fichero, de forma que pueda ser analizado por los programas SPECTRAN-F. Esto se consigue utilizando el encabezamiento del fichero correspondiente al primer espectro y el formato adecuado.

3.1.2.2 Comprobación del funcionamiento del programa.

Para la comprobación de la validez del programa se seleccionaron unas condiciones en la cadena electrónica que hacían corresponder los 2048 canales al intervalo energético de 0 a 200 keV (una relación de 10 canales/keV aproximadamente). Se midió un mineral de uranio, que presenta un número considerable de emisiones gamma en esta región. El espectro colectado se

muestra en la figura 3.1.4.

En primer lugar se comprobó la validez de la identificación de los picos en los espectros. En la tabla 3.1.2 se muestra un listado de los picos seleccionados, indicándose el número del canal con mayor número de cuentas en los dos espectros, la energía correspondiente y el radionúclido emisor.

ESPECTRO 1	ESPECTRO 2	ENERGIA (keV)	Radionúclido
111	107	10.80	X-ray Pb
274	271	27.36	²³¹ Pa
465	463	46.52	²¹⁰ Pb
501	499	50.20	²²⁷ Th
532	530	53.20	²¹⁴ Pb
633	631	63.29	²³⁴ Th
676	675	67.73	²³⁰ Th
748	746	74.81	X-ray Pb
770	769	77.11	X-ray Pb
837	837	83.78	²²³ Ra
873	871	87.20	X-ray Pb
898	897	89.80	²¹² Pb
924	925	92.60	²³⁴ Th
1127	1128	112.81	²³⁴ Th
1438	1438	143.76	²³⁵ U + ²²³ Ra
1541	1542	154.30	²²³ Ra
1632	1635	163.35	²³⁵ U
1860	1862	185.99	²²⁶ Ra + ²³⁵ U

Tabla 3.1.2 Listado de picos identificados por el programa LULEPS en una muestra de mineral de uranio.

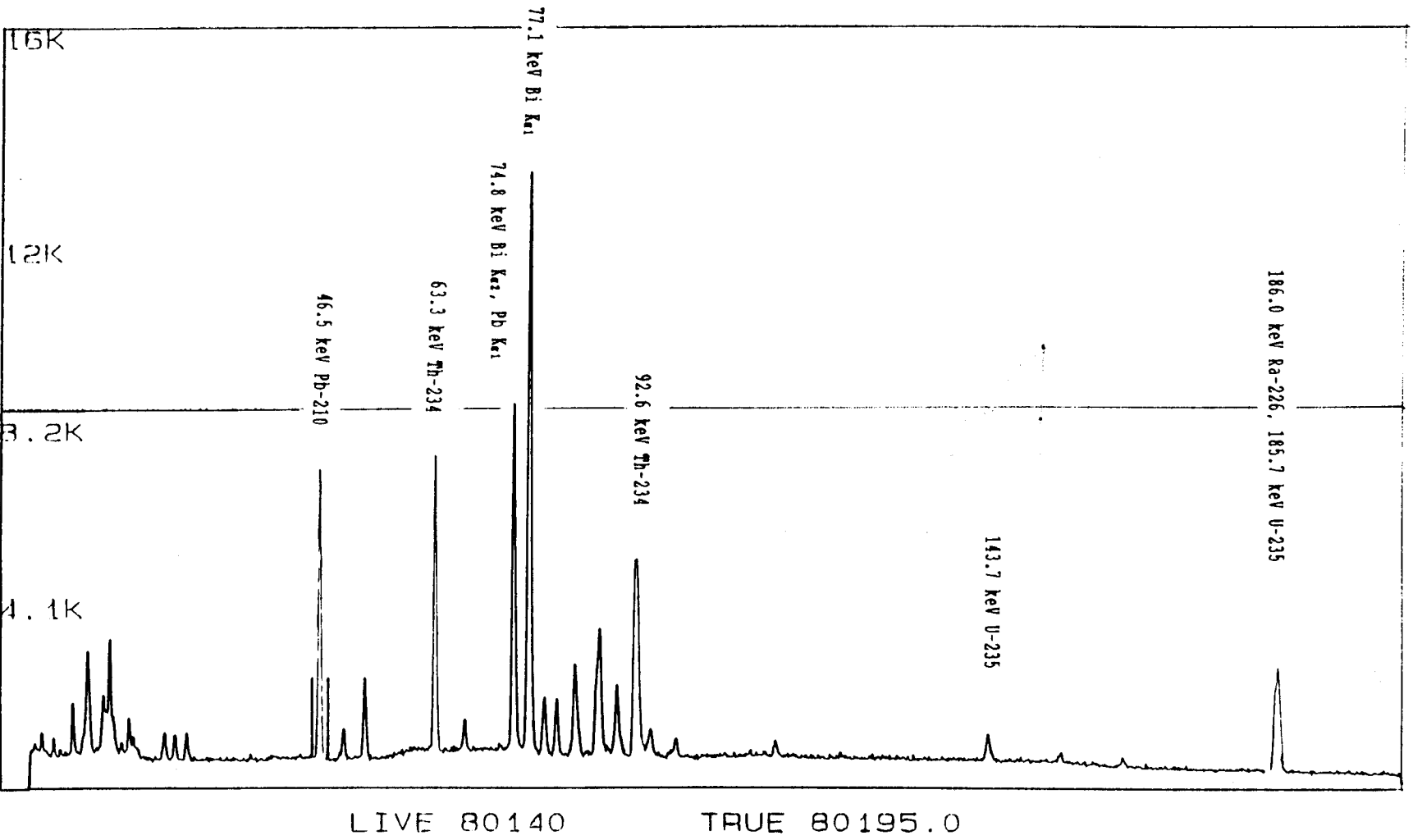


Figura 3.1.4 Espectro de un mineral de uranio colectado con el sistema LEPS, utilizado para verificar el funcionamiento del programa LULEPS.

Una vez comprobado que el programa identifica bien los picos en ambos espectros se compararon los espectros suma obtenidos con él y a partir de la opción STRIP del MCA. El parámetro que nos informará del método de suma más idóneo es la anchura de los picos a mitad del máximo, FWHM. En la tabla 3.1.3 se presentan los valores de la FWHM de los espectros sumados por los dos métodos (columnas 3 y 4), su diferencia relativa (columna 5), la energía y la diferencia en canales entre los máximos de los espectros colectados (columnas 1 y 2).

ENERGIA (keV)	Dif. CANALES	FWHM STRIP	FWHM LULEPS	Dif. %
10.8	3.8	7.02	4.16	67
27.4	3.1	7.03	4.40	60
46.5	2.5	5.63	4.69	20
53.1	2.0	5.52	4.76	16
63.2	1.9	5.48	5.08	8
74.7	1.4	5.86	5.64	4
77.0	1.4	6.00	5.85	3
83.7	1.3	6.41	6.44	- 0.5
143.8	- 0.6	8.60	8.49	1
154.2	- 1.5	7.24	6.85	6
163.2	- 1.0	7.24	7.00	3
186.0	- 1.9	9.54	9.52	0

Tabla 3.1.3 Comparación de la resolución de los espectros suma obtenidos directamente y con el programa LULEPS.

Como era de esperar, las anchuras de los picos del espectro sumado con el programa LULEPS son inferiores a las correspondientes al espectro obtenido por suma directa. Estas diferencias varían entre un 67 % en el pico de 10.8 keV, donde el desplazamiento entre los dos espectros colectados es mayor,

hasta ser despreciable, precisamente en la zona donde los picos de los dos espectros coinciden mejor. Los picos de 143.8 y 186.0 keV corresponden cada uno a dos emisiones gamma de energías próximas, por lo que el valor de la FWHM es mayor que el de las otras líneas cercanas.

Los desplazamientos entre los centros de los picos en los espectros colectados varían entre 3.8 y -1.9 canales (referidos al espectro del detector 1). Estas diferencias pasadas a energías suponen corrimientos de unas pocas décimas de keV, que son muy difíciles de corregir mediante el ajuste de las cadenas electrónicas. Queda claro que el espectro sumado con el programa LULEPS tiene mayor resolución que el obtenido sumando canal a canal. Falta por demostrar que se pierde poco poder de resolución respecto a los detectores por separado, cosa que haremos en el apartado 3.1.3.3.

Hay que señalar que la comprobación se ha realizado en condiciones muy favorables (muestra moderadamente activa y un tiempo de recuento alto, con la consiguiente mejora de la estadística, así como un ajuste reciente de las cadenas electrónicas). En el caso de la medida de muestras ambientales de forma rutinaria las condiciones de contaje no serán tan favorables, y las ventajas que presenta el espectro suma del programa LULEPS serán aún más evidentes.

3.1.3 Calibración en energías.

El objeto de la calibración en energías de un espectrómetro gamma es la obtención de una relación entre la escala de altura de pulsos del MCA y la energía de los fotones. A partir de la función energía-canal se pueden asignar energías a los picos que aparecen en el espectro, lo que permite la identificación de los radionúclidos emisores de éstos. Por tanto, para un análisis cualitativo de los espectros es necesario disponer de la calibración en energías del detector

correspondiente. Así mismo, incluimos en este apartado la determinación de la resolución energética del sistema detector, FWHM, que nos informará de la capacidad de discriminación en energías y de la posible presencia de picos compuestos.

3.1.3.1 Selección de la ganancia de conversión del ADC.

Antes de realizar la calibración en energías es preciso concretar el intervalo de energías que se va a estudiar, de acuerdo con las posibilidades del detector y de los radionúclidos de interés. El sistema LEPS está destinado fundamentalmente al análisis de ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{230}Th y uranio en muestras procedentes de las distintas instalaciones de ENUSA (Empresa Nacional del Uranio). El ^{226}Ra es el radionúclido que tiene la emisión gamma de mayor energía entre éstos, con 186 keV. Sin embargo, el ^{235}U tiene una línea gamma con energía muy próxima, por lo que es interesante poder detectar los rayos gamma emitidos por los descendientes del ^{226}Ra . Entre éstos, las emisiones de menor energía son las del ^{214}Pb (239 y 352 keV). En definitiva, podemos fijar el intervalo de energías de interés entre 0 y 360 keV. Si podemos abarcar un intervalo más amplio siempre será conveniente, al darnos mayor información de las muestras medidas.

En cualquier medida de una distribución de altura de pulsos son dos los factores que influyen en la elección del número de canales a emplear, o bien si este número es fijo, en el intervalo energético a cubrir:

- El grado de resolución requerido.
- El número total de cuentas que se espera obtener.

Si se pudiesen acumular un número arbitrariamente grande de cuentas en el espectro no habría inconveniente en hacer el número de canales tan grande como fuera posible. Al emplear un gran número de canales, la anchura de cada uno de ellos será muy pequeña, y el espectro discreto medido reproducirá con mayor fidelidad la verdadera distribución continua.

El problema surge cuando el número de cuentas que se espera obtener en el espectro no es grande (bien sea por limitaciones en el tiempo de medida o por tratarse de muestras con actividades extremadamente bajas). Al ser el número de sucesos que se acumulan en un canal dependiente de su anchura, el contenido medio de cuentas en un canal variará inversamente con el número total de canales en los que se acumule el espectro. La elección de un número mayor de canales causará, en consecuencia, una mayor incertidumbre estadística relativa del contenido de cada canal, siendo más apreciables las fluctuaciones entre los contenidos de canales próximos. Si estas fluctuaciones son bastante grandes dificultarán, o incluso impedirán, la localización de pequeños picos en el espectro, que podrán perderse en el ruido estadístico.

Es, por tanto, necesario llegar a una solución de compromiso a la hora de elegir la ganancia de conversión de un sistema espectrométrico. Esta solución nos llega de la mano de Knoll <KNOLL-79>, que recomienda emplear un mínimo de tres o cuatro canales para cubrir el intervalo de altura de pulsos correspondiente a la FWHM de los picos.

Ahora estamos en condiciones de seleccionar la ganancia de conversión de los ADC's del sistema LEPS. La resolución de los detectores planares del sistema es (ver tabla 3.1.1) 0.63 keV para el fotón de 122 keV del ^{57}Co . Si hacemos corresponder cuatro canales a este intervalo energético, para la zona completa de energías de interés se necesitarán 2286 canales. Las ganancias de conversión de los ADC's han de ser potencias de dos, y el valor más próximo es 2K (2048) canales. Haciendo la operación inversa obtenemos que la FWHM del pico de 122 keV estará representada por 3.6 canales, valor que cumple la recomendación de Knoll.

3.1.3.2 Relación energía canal.

Una vez fijadas las condiciones de trabajo en las cadenas electrónicas de los dos detectores del sistema (intervalo energético con la ganancia del amplificador y número de canales con la ganancia de conversión del ADC) se puede proceder a la calibración en energías. Para ello se necesita una fuente que emita varios rayos gamma, con energías bien conocidas, dentro del intervalo energético de interés. Conviene que estas emisiones estén regularmente espaciadas y que no presenten interferencias mutuas, que dificultarían el análisis. La muestra de mineral de uranio no reúne estos últimos requisitos, y por ello se preparó una muestra con una mezcla de varios radionúclidos, que se indican en la tabla 3.1.4 junto con los demás datos de interés de la calibración.

La relación energía-canal en los espectrómetros de germanio es esencialmente lineal, por lo que en principio, con sólo dos picos de referencia podríamos calcular la recta de calibración. Es, sin embargo, conveniente utilizar una función cuadrática para este ajuste, que incluya cualquier posible anomalía en la cadena electrónica, como puede ser falta de linealidad en la amplificación de los pulsos. En nuestro caso ajustaremos los puntos por mínimos cuadrados a una parábola, de la forma:

$$E(\text{keV}) = A_1 + A_2 \cdot Ch + A_3 \cdot Ch^2 \quad [3.3]$$

En los casos en los que se requiere una gran precisión en la determinación de las energías de los picos es necesario considerar la falta de linealidad en la respuesta del ADC, especialmente en los primeros canales. Para tratar estas desviaciones se ha sugerido la inclusión de más términos en la ecuación energía-canal <DRYAK-86>:

$$E(\text{keV}) = \frac{A_{-2}}{Ch^2} + \frac{A_{-1}}{Ch} + A_1 + A_2 \cdot Ch \quad [3.4]$$

Se realizó un ajuste por el método de los mínimos cuadrados de las posiciones de los centroides frente a la energía (estos datos se muestran en las columnas 3 y 1 de la tabla 3.1.4; los parámetros obtenidos son los siguientes:

Función cuadrática	Función lineal
$A_1 = 0.80631$	$A_1 = 0.612828$
$A_2 = 0.1513$	$A_2 = 0.151879$
$A_3 = 3.0343 \cdot 10^{-7}$	

En las columnas 4 y 5 de la tabla 3.1.4 y en la figura 3.1.5 se presentan las desviaciones entre la energía de los fotopicos y el valor calculado a partir de los ajustes a una línea recta y a una parábola. Las desviaciones de las energías calculadas son menores que 0.2 keV en los dos casos, si bien hay que destacar la mayor aproximación de la función cuadrática, que es la que utilizaremos para los cálculos.

E (keV)	NUCL.	CENTROIDE (canal)	Desv.cuad. (keV)	Desv.lin. (keV)
26.36	²⁴¹ Am	168.92	-0.0126	0.0918
33.20	²⁴¹ Am	214.02	-0.0014	0.0820
46.52	²¹⁰ Pb	302.05	-0.0142	0.0321
59.54	²⁴¹ Am	387.03	0.1306	0.1454
88.04	¹⁰⁹ Cd	576.96	-0.1614	-0.2009
122.07	⁵⁷ Co	800.17	0.0037	-0.0718
136.43	⁵⁷ Co	894.91	-0.0192	-0.1009
165.85	¹³⁹ Ce	1088.11	0.0534	-0.0239
255.04	¹¹³ Sn	1675.16	-0.069	0.0055
279.17	²⁰³ Hg	1833.47	-0.0603	0.0916

Tabla 3.1.4 Datos obtenidos para la calibración en energías del sistema LEPS.

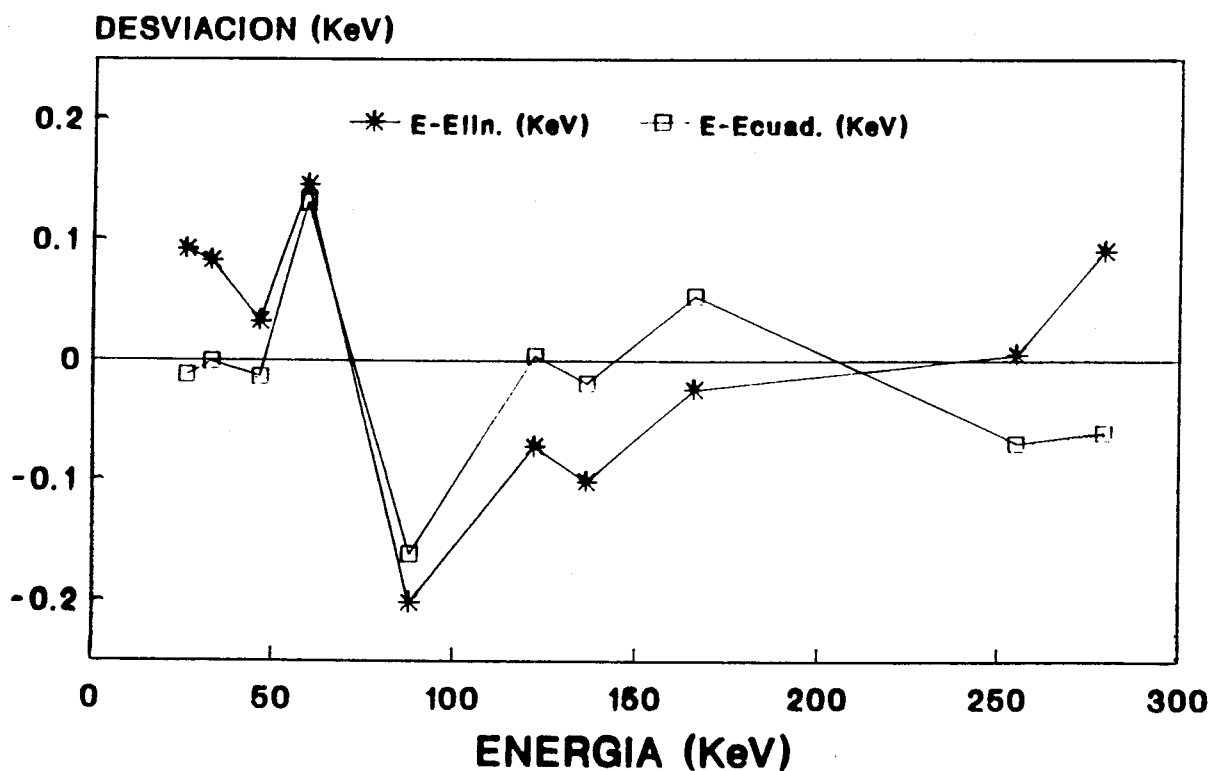


Figura 3.1.5 Desviación en el cálculo de la energía utilizando una función energía canal lineal y otra cuadrática.

3.1.3.3 Resolución en energías.

La resolución en energías de los detectores de germanio varía con la energía del rayo gamma. La principal importancia de conocer la relación entre la resolución, FWHM, y la energía es que servirá para apreciar la presencia de picos no resueltos en los espectros. En la tabla 3.1.5 se listan los valores medidos de la resolución, en canales y en keV, para los diferentes picos de la muestra de calibración.

El ajuste de la FWHM frente a la energía, ambas expresadas en keV, a una línea recta dio los siguientes resultados:

$$\text{FWHM} = A + B \cdot E \quad [3.5]$$

$$A = 0.413713$$

$$B = 1.644 \cdot 10^{-3}$$

$$r = 0.995069$$

Por último señalar que el valor medido de la FWHM para la línea de 122 keV del ^{57}Co , 0.62 keV, está entre los valores garantizado y medido por el fabricante de los detectores para cada uno de ellos individualmente. Este hecho nos sirve para validar tanto la puesta a punto de las cadenas electrónicas como el programa LULEPS de suma de espectros.

E (keV)	NUCL.	FWHM (canales)	FWHM (keV)
26.36	^{241}Am	2.81	0.44
33.20	^{241}Am	2.95	0.45
46.52	^{210}Pb	3.23	0.49
59.54	^{241}Am	3.30	0.52
88.04	^{109}Cd	3.92	0.58
122.07	^{57}Co	4.10	0.62
136.43	^{57}Co	4.18	0.64
165.85	^{139}Ce	4.50	0.70
255.04	^{113}Sn	5.43	0.84
279.17	^{203}Hg	5.49	0.85

Tabla 3.1.5 Resolución en energías del detector LEPS para los diferentes picos de la muestra de calibración.

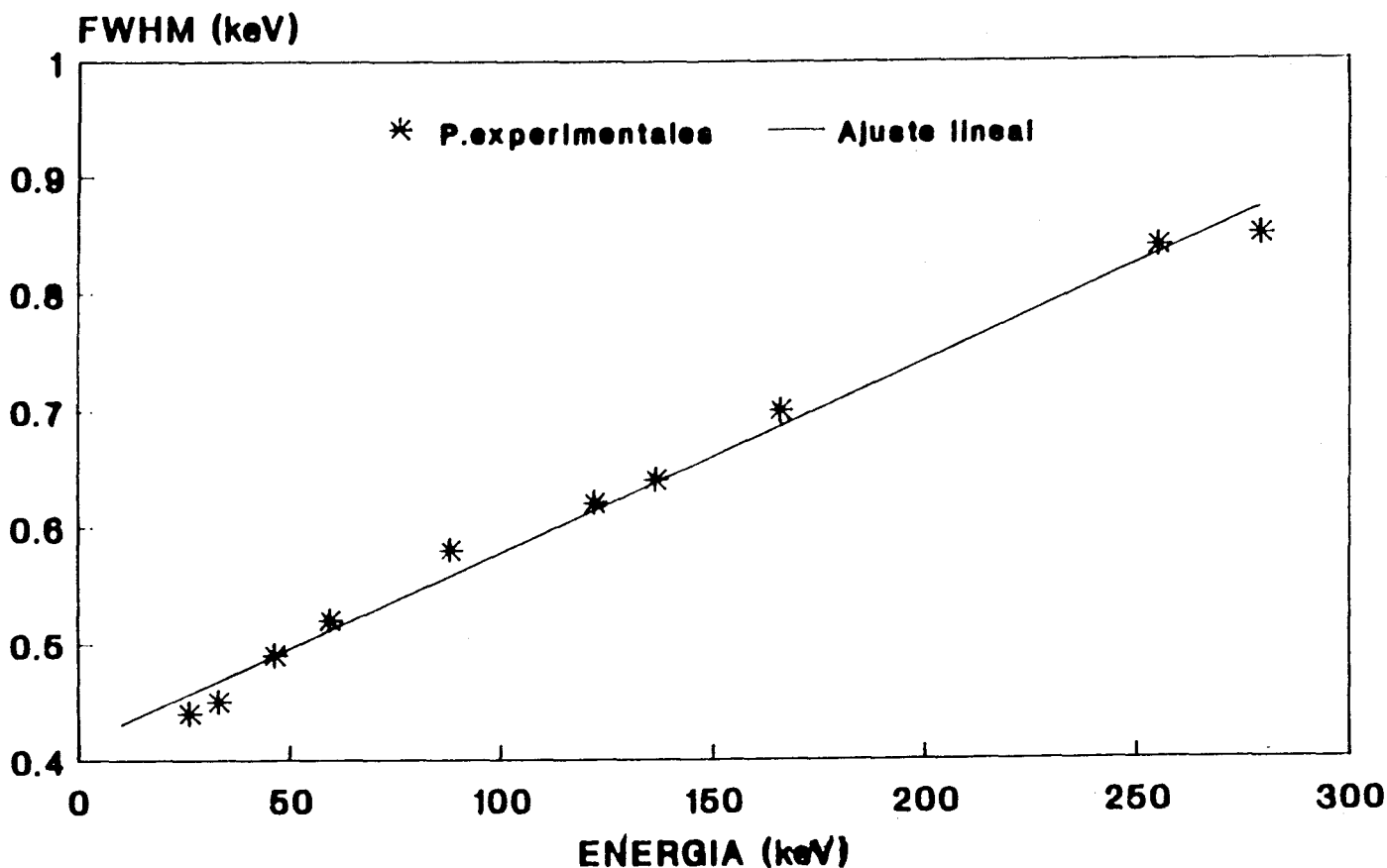


Figura 3.1.6 FWHM frente a la energía.

3.1.4 Calibración en eficiencias.

Una vez que se tiene calibrado en energías un sistema de espectrometría gamma se pueden realizar análisis cualitativos de los espectros, identificándose los radionúclidos por el valor de la energía de sus emisiones gamma. Sin embargo, antes de poder dar resultados cuantitativos, actividades o concentraciones, es necesario conocer la eficiencia de recuento del detector y su dependencia con la energía de los fotones incidentes.

La eficiencia de recuento no es más que la relación entre el número de fotones de una determinada energía emitidos por la muestra y el número de éstos que, una vez que han

interaccionado con el detector, dan lugar a cuentas en el fotopico correspondiente. Es evidente que estamos hablando de la eficiencia absoluta de pico.

La dependencia de la eficiencia con diferentes parámetros, como pueden ser la energía, la distancia muestra detector o la forma geométrica de la muestra, es evidente y ya se discutió someramente en el apartado 2.2.2.1. En lo que sigue abordaremos la elección de la geometría de recuento, la elección de los radionúclidos para la calibración, el cálculo de las eficiencias y el ajuste de la función eficiencia frente a energía.

3.1.4.1 Geometría de medida.

Dada la especial disposición geométrica de los detectores del sistema LEPS, el tamaño y forma de las muestras que han de medirse están seriamente limitadas. La disposición en oposición de dos detectores de germanio planares estaba destinada originalmente a la medida de transuránidos, especialmente plutonio y americio en suelos <CROWELL-81>. Las emisiones fotónicas de los isótopos del plutonio, en su mayoría rayos X, tienen energías inferiores a 20 keV y, dado su bajo poder de penetración, para su análisis es conveniente disponer de una muestra de pequeño grosor.

Las muestras de sedimentos y suelos que se miden con el sistema LEPS se meten en cajas cilíndricas de acetato de celulosa, cuyas dimensiones son las máximas que admite el sistema: el diámetro y grosor de las cajas es de 72 y 8 mm respectivamente. La tapa superior de la caja se puede sellar a la base añadiendo unas gotas de acetona, con lo que se evita una posible contaminación del sistema.

Dependiendo de la densidad de las tierras que se miden, el peso de muestra analizable llega hasta unos 20 g. El grado de atenuación de las radiaciones gamma de baja energía al atravesar

la muestra será diferente dependiendo de la densidad y de la composición de ésta (recordemos que la disposición geométrica muestra-detector es prácticamente constante). Para tener en cuenta este comportamiento, se preparan diferentes curvas de calibración, correspondiendo cada una de ellas a una densidad de la muestra. La composición química de la muestra de calibración se hace lo más parecida posible a las muestras problema, seleccionando tierras o sedimentos de similar origen a las de éstas para la preparación de los patrones.

En esta sección presentaremos los resultados de la calibración realizada con 12 g de tierras, por ser la más utilizada en el laboratorio. El resto de las curvas utilizadas se discutirán a medida que se vayan aplicando a las muestras medidas.

3.1.4.2 Elección de los radionúclidos.

Para construir una buena curva de eficiencia se necesita disponer de una fuente radiactiva con actividad bien conocida que presente un número aceptable de fotopicos en la región de energías de interés. Adicionalmente, las características nucleares de los radionúclidos de la fuente, como periodo de semidesintegración e intensidades de emisión de las diferentes líneas gamma, deben ser bien conocidas.

Todos estos requisitos son resueltos sin excesivos problemas cuando el intervalo de energías en el que se trabaja está entre 100 y 3000 keV, ya que son fácilmente asequibles soluciones de radionúclidos bien estudiados con emisiones gamma en esta zona (^{152}Eu , ^{226}Ra , etc.), e incluso "cócteles" con mezclas de núclidos cuyas energías cubren casi uniformemente la región de 100 a 2000 keV. Sin embargo, la elección de radionúclidos con emisiones por debajo de los 300 keV constituye un problema que, obviamente, se ha de resolver.

Ante la imposibilidad de adquirir soluciones calibradas

de ^{182}Ta o ^{169}Yb , que presentan varias emisiones gamma entre 10 y 300 keV, se optó por utilizar una serie de radionúclidos que presentan individualmente pocas líneas gamma, pero que en conjunto cubren de manera satisfactoria la región de interés. Estos núclidos son ^{210}Pb , ^{241}Am , ^{75}Se , ^{109}Cd , ^{57}Co y ^{139}Ce . Los últimos tres radionúclidos forman parte del cóctel de calibración de Amersham, del que hablaremos más extensamente en el apartado dedicado a la calibración del detector ReGe (3.2.3). En la tabla 3.1.6 se muestran sus principales características nucleares (periodo de semidesintegración y principales emisiones gamma). Los valores de los parámetros nucleares se tomaron del catálogo de rayos gamma de Reus y Westmeier <REUS-83>.

NUCL	$T_{1/2}$	ENERGIA (keV)	INTENSIDAD (%)
^{210}Pb	22.3 a	46.52	4.05
^{241}Am	432.2 a	26.36	2.40
		59.54	35.9
^{75}Se	119.77 d	121.12	17.3
		136.60	59.0
		264.60	59.1
		279.50	25.2
^{109}Cd	461.9 d	22.10	84.2
		88.04	3.61
^{57}Co	271.7 d	122.07	85.6
		136.43	10.6
^{139}Ce	137.66 d	165.85	79.9

Tabla 3.1.6 Parámetros nucleares de los radionúclidos utilizados para la calibración en eficiencias del sistema LEPS. Los datos se han tomado de <REUS-83>.

3.1.4.3 Preparación de los patrones y cálculo de las eficiencias.

Los radionúclidos antes citados se adquirieron en forma de soluciones a la casa Amersham. Hay que señalar que los núclidos ^{109}Cd , ^{57}Co y ^{139}Ce formaban parte de la misma solución estándar. En el apéndice A-2 se adjuntan los certificados de calibración correspondientes. Las soluciones patrones vienen en ampollas de vidrio, que se abren en la instalación radiactiva IR/05 del Instituto PRYMA. Se procede a continuación a la dosificación del contenido de las ampollas con ayuda de una jeringuilla hipodérmica, utilizándose viales de plástico para recoger la solución. La cantidad de solución que contiene cada vial, unos 0.2 g, se determina por pesada con una balanza de alta precisión (10^{-5} g), de forma que el error cometido en la pesada es despreciable frente a la incertidumbre total en la actividad de los patrones (entre 0.5 y 4 %).

Se preparan tres cajas conteniendo 12 g de tierra para cada una de las soluciones. La razón de esta redundancia de las muestras de calibración es la de poder discriminar aquellas que presenten resultados anómalos, como consecuencia de errores durante su preparación. El contenido de cada vial es añadido cuidadosamente sobre el sedimento, tratando de evitar pérdidas por efervescencia (normalmente las soluciones de radionúclidos son ácidas, y reaccionan con los carbonatos presentes en la tierra, desprendiéndose CO_2).

A continuación se lava el vial repetidas veces con agua destilada para que la totalidad de la solución pase a la muestra patrón. Una vez finalizado este proceso, los viales vacíos se miden con un detector de germanio para comprobar que han sido correctamente lavados y que la totalidad de la solución estándar ha pasado al patrón. Los patrones preparados se dejan secar al aire durante unos días, después de lo cual se homogeneiza el contenido de la caja por agitación. Los patrones una vez terminados se sellan con acetona y quedan listos para ser

medidos.

Se realizan tres medidas de cada patrón, por lo que al final se dispone de nueve espectros de cada solución. Entre cada medida se agita la muestra para comprobar el grado de homogeneidad. Los espectros se analizan con el paquete de programas SPECTRAN-F, calculándose las eficiencias para las energías que aparezcan en el espectro. En caso de haber valores discordantes, al haberse preparado tres patrones idénticos, se puede rechazar uno de ellos, o los tres, por posible error durante su fabricación. Para cada valor de la energía se calcula la eficiencia media obtenida, eliminando los valores estadísticamente aberrantes. A cada eficiencia se le asocia una incertidumbre igual a la dispersión cuadrática de los valores medidos y no rechazados.

3.1.4.4 Ajuste de la función eficiencia-energía.

Para calcular la actividad de un radionúclido emisor gamma con energía comprendida en el intervalo de interés se ha de conocer la eficiencia para ese valor particular de la energía. Como no siempre se determinan los mismos radionúclidos que se utilizaron para la calibración en eficiencias, es preciso poder determinar el valor de la eficiencia dentro de la zona de energías estudiada. Esto se hace normalmente ajustando el conjunto de eficiencias obtenidas experimentalmente a una determinada función de la energía. En la literatura aparecen muchas funciones, tanto semiempíricas como analíticas, utilizadas para describir el comportamiento de la eficiencia con la energía; en <DEBERTIN-88> se hace un examen crítico de algunas de ellas. En el intervalo de 100 a 2000 keV son válidas la mayor parte de estas funciones, no encontrándose diferencias significativas, como lo demuestra el estudio de Martí <MARTI-86>.

El programa CALIB del paquete SPECTRAN-F, que se utiliza en nuestro laboratorio para la calibración de los

detectores de germanio, utiliza para este ajuste una función polinómica en escala doblemente logarítmica. Con objeto de que la curva describa con mayor fidelidad el comportamiento de los puntos experimentales, el programa realiza un doble ajuste por el método de los mínimos cuadrados ponderados, con un punto de unión de las dos funciones polinómicas:

$$E < E_c \quad \ln \epsilon_{\text{eff}} = \sum_{i=0}^n a_i (\ln E)^i \quad [3.6]$$

$$E > E_c \quad \ln \epsilon_{\text{eff}} = \sum_{i=0}^m b_i (\ln E)^i$$

Desgraciadamente, la condición de que las dos ramas de la curva solapen suavemente (ésto es, que tengan el mismo valor y la misma derivada) no se encuentra en el algoritmo de ajuste utilizado, por lo que la elección del punto de corte, crossover energy, se ha de realizar de manera que la función de la eficiencia presente continuidad en dicho punto.

Los valores obtenidos en el ajuste del programa CALIB son los siguientes:

$E < 59.54 \text{ keV}$	$E > 59.54 \text{ keV}$
$n = 2$	$m = 4$
$a_0 = -18.96886$	$b_0 = 324.5197$
$a_1 = 8.514137$	$b_1 = -284.8682$
$a_2 = -1.076181$	$b_2 = 92.31344$
	$b_3 = -13.14731$
	$b_4 = 0.6923451$

El número de puntos experimentales utilizado para cada rama de la curva es 4 para bajas energías ($E < 59.54 \text{ keV}$) y 9 para altas (el punto de unión se utiliza para ambos ajustes). Esto explica el diferente grado de los polinomios ajustados.

En la tabla 3.1.7 se presentan los valores medios de las eficiencias experimentales junto con los valores calculados por la función polinómica ajustada y las diferencias entre éstos. En la figura 3.1.7 se ilustran estos mismos datos.

ENERGIA (keV)	eff media	eff calculada	Diferencia relativa %
22.10	5.342 ± 0.078	5.365	-0.43
26.53	7.61 ± 0.29	7.259	+4.61
46.52	11.57 ± 0.26	11.724	-1.33
59.54	11.81 ± 0.34	11.813	-0.03
88.04	11.35 ± 0.13	11.351	-0.01
121.12	8.95 ± 0.21	9.033	-0.93
122.07	8.97 ± 0.18	8.952	+0.20
136.43	8.07 ± 0.25	7.762	+3.82
136.60	7.67 ± 0.15	7.748	-1.02
165.85	5.637 ± 0.088	5.645	-0.14
264.6	2.351 ± 0.050	2.349	+0.09
279.5	2.165 ± 0.052	2.166	-0.05

Tabla 3.1.7 Comparación entre los valores experimentales de la eficiencia y los calculados usando la función polinómica ajustada. Las eficiencias están en tantos por ciento.

Los valores calculados a partir de la función polinómica ajustada muestran un buen acuerdo con las eficiencias experimentales de partida, poniendo de manifiesto la versatilidad de este tipo de funciones para describir el comportamiento de la eficiencia. Las desviaciones máximas encontradas, para las energías de 26.53 y 136.43 keV, son inferiores al 5 %, y pueden ser debidas a errores en la evaluación de la eficiencia experimental (son los picos con menores intensidades de emisión).

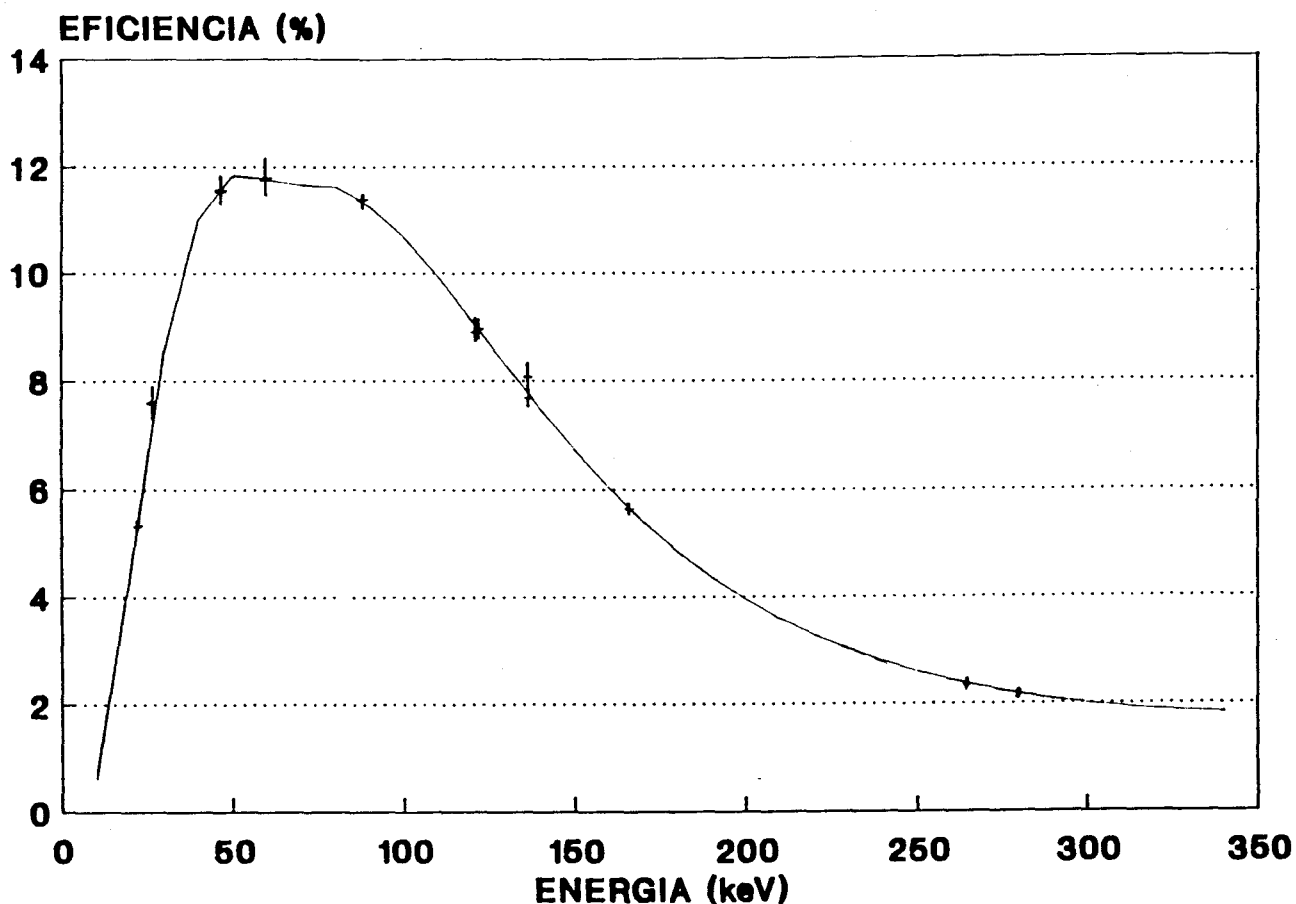


Figura 3.1.7 Valores experimentales y ajustados de la eficiencia del detector LEPS para la geometría SED-12.

A la vista de la figura 3.1.7 se pueden comentar varias características, típicas de los detectores de germanio planos:

- La aparición de una zona de eficiencias prácticamente constante, entre 45 y 100 keV aproximadamente.

- La eficiencia disminuye por debajo del uno por ciento para energías por debajo de 10 keV. Este hecho es motivado por la atenuación de los fotones menos energéticos en el sedimento del patrón y en la cajita portamuestras.

- La eficiencia disminuye progresivamente a medida que se superan los 100 keV.

3.1.4.5 Influencia de la autoabsorción.

La atenuación de los fotones antes de alcanzar el volumen activo del detector es el principal problema que plantea la espectrometría gamma de bajas energías. Una vez que se ha escogido un detector apropiado y una geometría de medida (o lo que es lo mismo, una curva de eficiencias), la única diferencia en el comportamiento de los fotones emitidos por las muestras a medir viene motivada por la distinta absorción de éstos en la muestra. Este comportamiento diferencial está causado por la posible diferencia en densidad y en composición de los patrones empleados en la calibración y las muestras problemas.

En este trabajo hemos abordado la problemática de la autoabsorción desde un punto de vista operativo más que teórico. Como se vio en la sección de preparación de los patrones de calibración, las matrices utilizadas son semejantes a las muestras problema que se han de medir. Con esta elección se evita que exista una gran diferencia entre la curva real de eficiencia, correspondiente a cada muestra particular que se mide, y la curva obtenida con los patrones. La multiplicidad de curvas de calibración necesarias para analizar muestras en la misma geometría pero con diferentes matrices constituye un serio inconveniente de esta manera de proceder. Además, es posible que existan diferencias apreciables entre los patrones y las muestras problema.

El método que hemos adoptado para evitar estos inconvenientes consiste en calcular el coeficiente de transmisión a través de la muestra de fotones para algunas energías, siguiendo el método propuesto por Cutshall et al. <CUTSHALL-83>. Este método ha ganado una amplia aceptación en la comunidad internacional, y será descrito en detalle en la sección 3.4,

junto con las investigaciones realizadas en nuestro laboratorio para la puesta a punto de la técnica.

3.1.5 Fondo del sistema LEPS.

El último paso de la puesta a punto de un detector antes de empezar a dar resultados cuantitativos es la medida del fondo. Como se indicó en el capítulo dos, el ambiente que nos rodea está inmerso en radiaciones procedentes de radionúclidos, naturales o artificiales, y del espacio exterior. Es preciso conocer la respuesta del detector a la radiación ambiental para poder sustraerla de la medida de las distintas muestras.

En la figura 3.1.8 se muestra un espectro típico de fondo donde se han indicado las energías de los picos que aparecen. Las principales características de este espectro de fondo son:

- La línea base del espectro va disminuyendo su altura a medida que aumenta la energía, excepto en la región de 50 a 100 keV, donde crece, formando una especie de lomo. La línea base no es continua sino que presenta una serie de pequeñas oscilaciones, correspondientes a la dispersión estadística del número de cuentas acumulado en los canales contiguos.

- Sobre la línea base se distinguen una serie de picos, de diferente amplitud, cuyas energías están indicadas en la figura 3.1.8. En la tabla 3.1.8 se muestran las energías de los picos que aparecen en el espectro junto con su procedencia.

- A excepción de los picos de 24.2 y 27.3 keV, todos los picos que aparecen en el espectro de fondo son originados por el decaimiento de radionúclidos

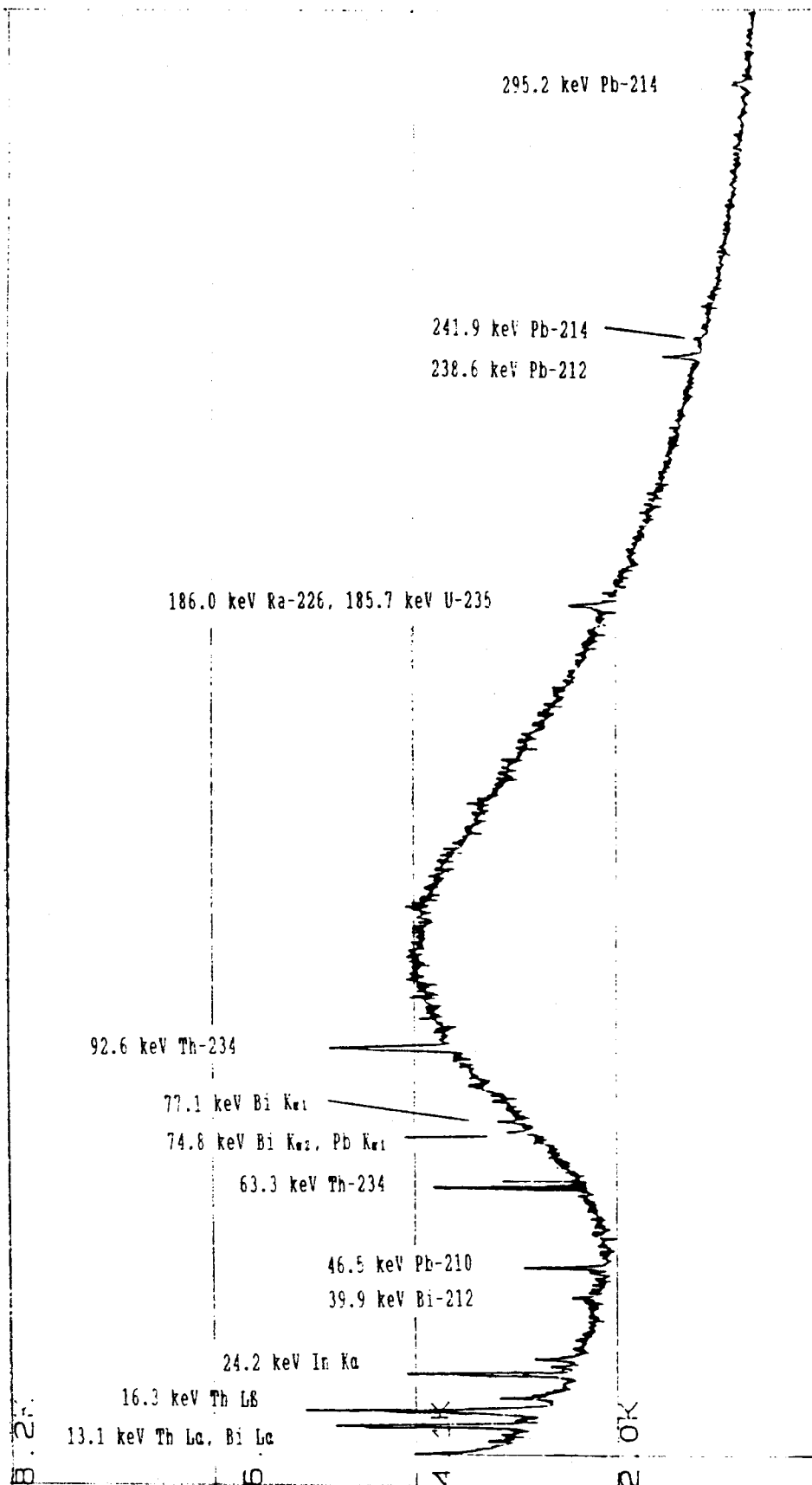


Figura 3.1.8 Espectro típico de fondo del detector LEPS. Se han señalado las energías de los picos más importantes.

pertenecientes a las series radiactivas naturales. Los dos picos indicados corresponden a rayos X del indio, que forma parte de uno de los contactos eléctricos del detector <ROY-89>.

ENERGIA	ORIGEN	INTENSIDAD (%)
13.1	Th L_{α} + Bi L_{β}	17. + 8.8
16.3	Th L_{β}	20.8
19.4	Th L_{γ}	5.3
24.2	In K_{α}	#
25.6	^{231}Th	12.5
27.3	In K_{β}	#
39.9	^{212}Bi	1.1
46.5	^{210}Pb	4.05
63.3	^{234}Th	3.81
74.7	Pb K_{α} + Bi K_{α}	6.4
77.1	Bi K_{α}	11.1
92.6	^{234}Th	5.41
186.0	^{226}Ra + ^{235}U	3.51 + 57.5
238.6	^{212}Pb	43.6
241.9	^{214}Pb	7.46
295.2	^{214}Pb	19.2

Tabla 3.1.8 Picos que aparecen en el espectro típico de fondo del detector LEPS. Las intensidades están referidas a 100 desintegraciones del radionúclido padre, y se han tomado de <REUS-83> y <STRAUSS-78>.

Desde 1987 se han tomado periódicamente espectros de fondo con el sistema detector LEPS para estudiar la evolución de los picos que aparecen en él y verificar que no se ha producido ninguna contaminación accidental. En la tabla 3.1.9 se listan los

valores medios ponderados del área neta de los picos más significativos. Para realizar las medias se tomaron las inversas de las incertidumbres al cuadrado de cada medida como factores de peso.

ENERGIA	RADIONUCLIDO	CPS (10^{-3})
46.5	^{210}Pb	3.67 ± 0.13
63.3	^{234}Th	8.12 ± 0.15
92.6	^{234}Th	10.86 ± 0.28
186.0	$^{226}\text{Ra} + ^{235}\text{U}$	2.85 ± 0.17
238.6	^{212}Pb	2.41 ± 0.15
295.2	^{214}Pb	1.61 ± 0.15

Tabla 3.1.9 Valores medios ponderados del área neta de los fotopicos gamma más importantes del fondo del detector LEPS.

La sustracción de la actividad ambiental en la medida de una muestra se realiza con el último espectro de fondo tomado en lugar de con el valor medio acumulado de los fondos medidos.

La evolución temporal del fondo del detector LEPS se visualiza en las figuras 3.1.9 a 3.1.14, para las seis líneas que aparecen en la tabla 3.1.9. Se puede observar una dispersión de los resultados más que una variación sistemática a lo largo del periodo de casi cuatro años que se representa. Esta dispersión es debida a la naturaleza estocástica del proceso y es observada en todo tipo de detectores de radiación.

Desgraciadamente no se ha encontrado ningún trabajo en la literatura donde se indique el valor del área neta de fondo de los fotopicos aquí señalados para detectores de germanio de tipo plano, que hubiese servido como comparación.

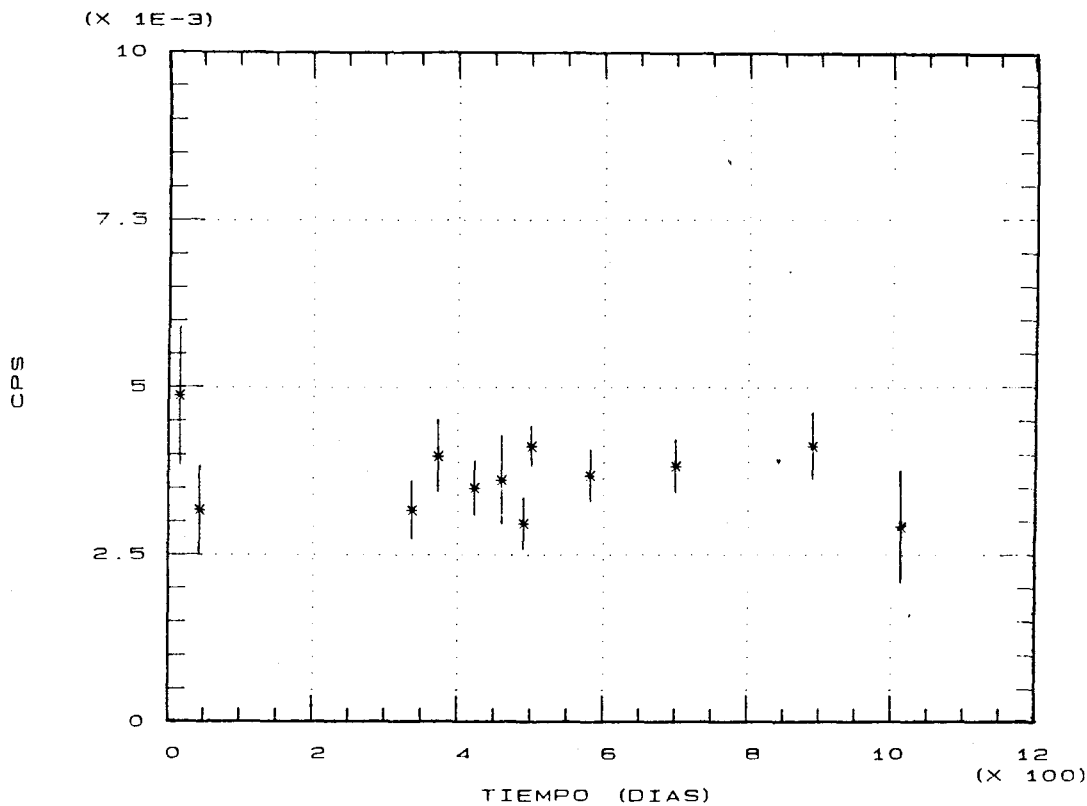


Figura 3.1.9 Variación temporal del área neta del pico de 46.5 keV en el espectro de fondo del detector LEPS.

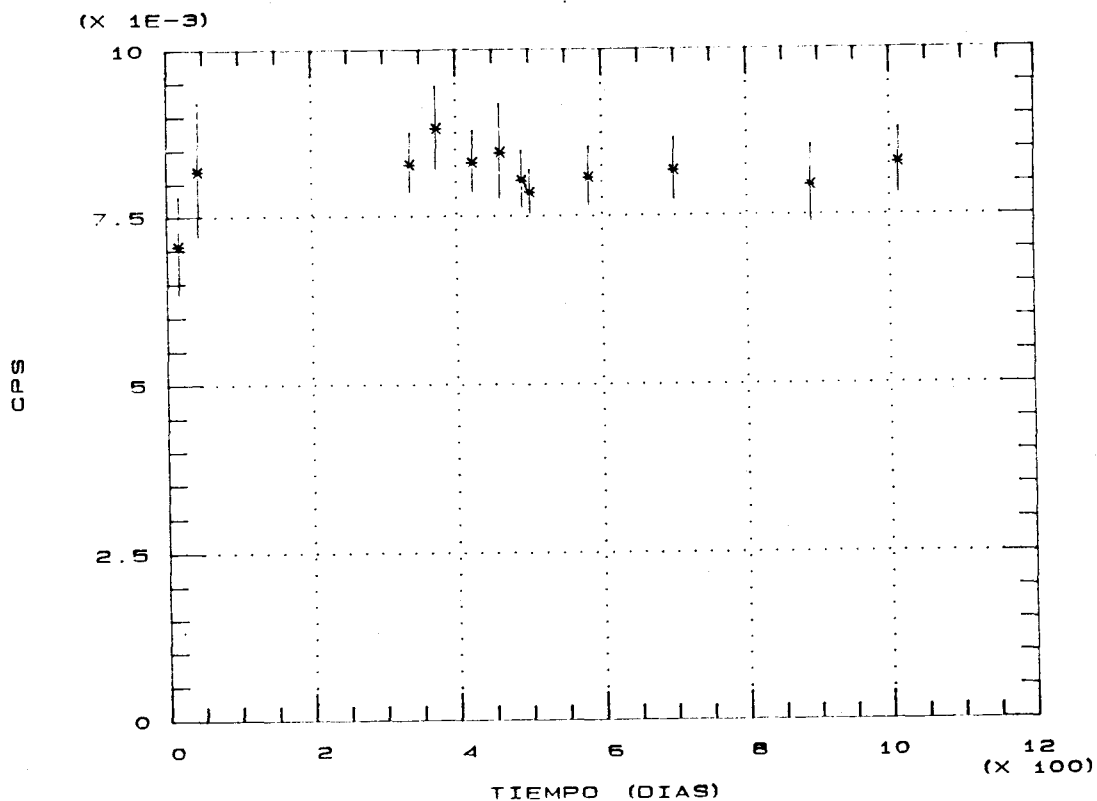


Figura 3.1.10 Variación temporal del área neta del pico de 63.3 keV en el espectro de fondo del detector LEPS.

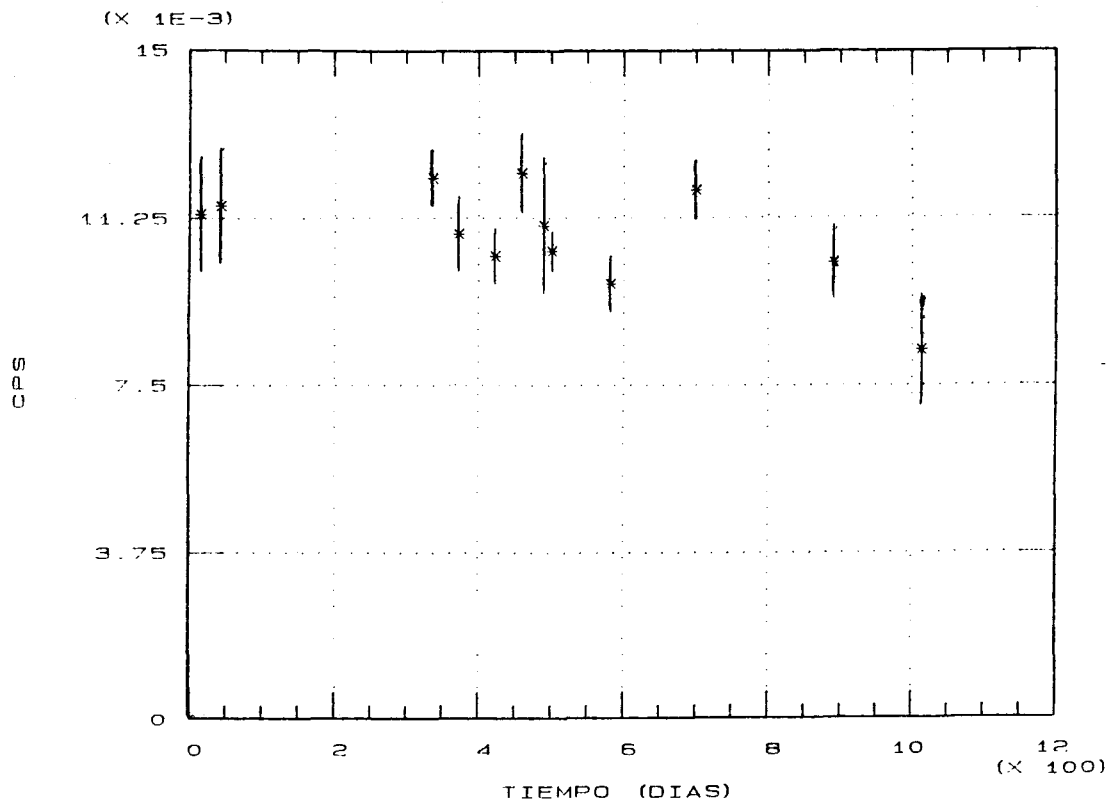


Figura 3.1.11 Variación temporal del área neta del pico de 92.6 keV en el espectro de fondo del detector LEPS.

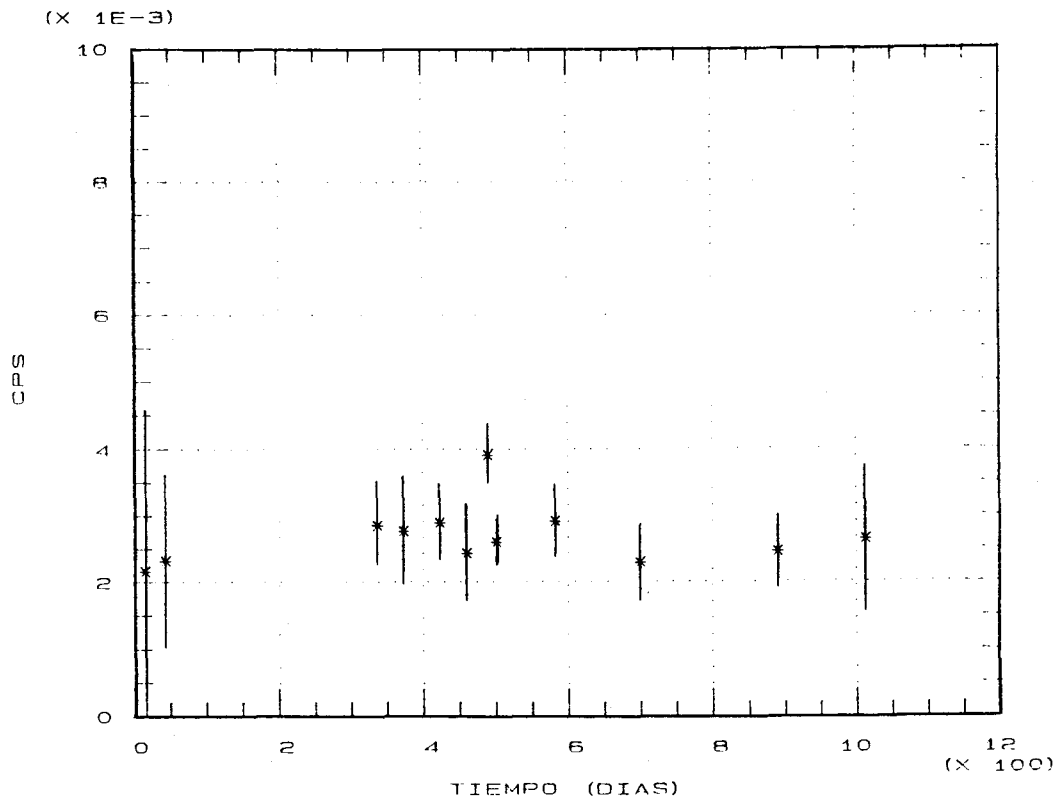


Figura 3.1.12 Variación temporal del área neta del pico de 186.0 keV en el espectro de fondo del detector LEPS.

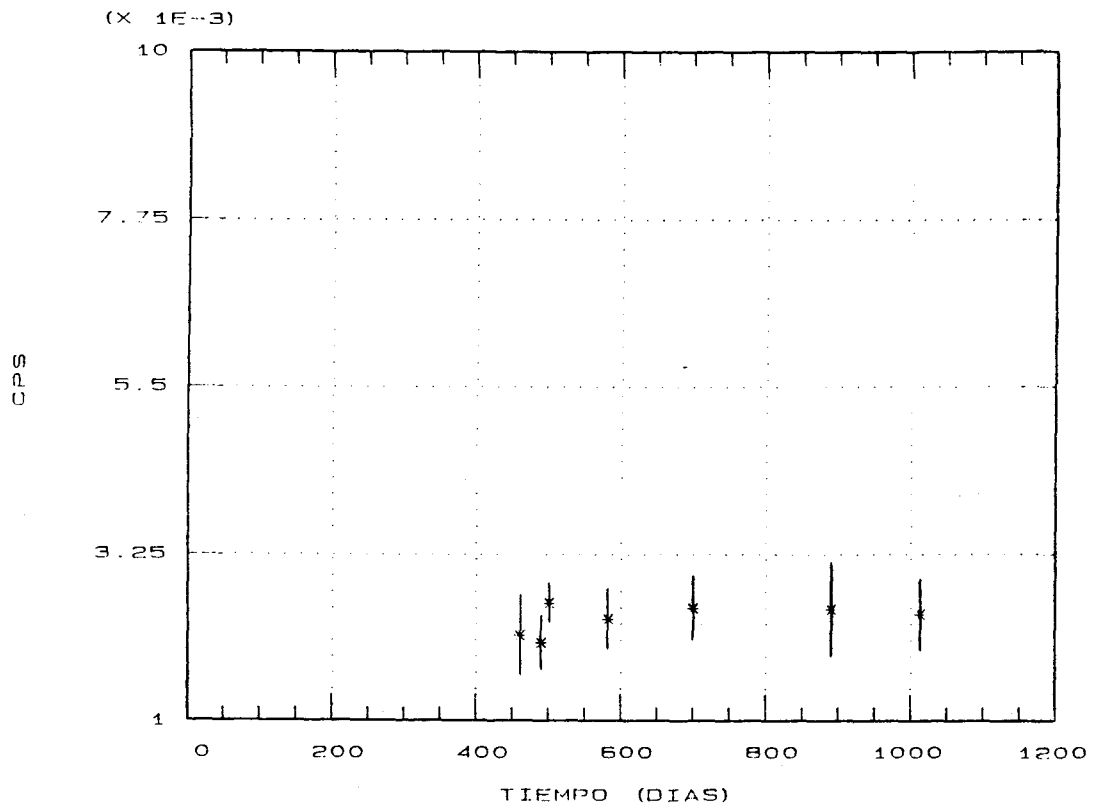


Figura 3.1.13 Variación temporal del área neta del pico de 238.6 keV en el espectro de fondo del detector LEPS.

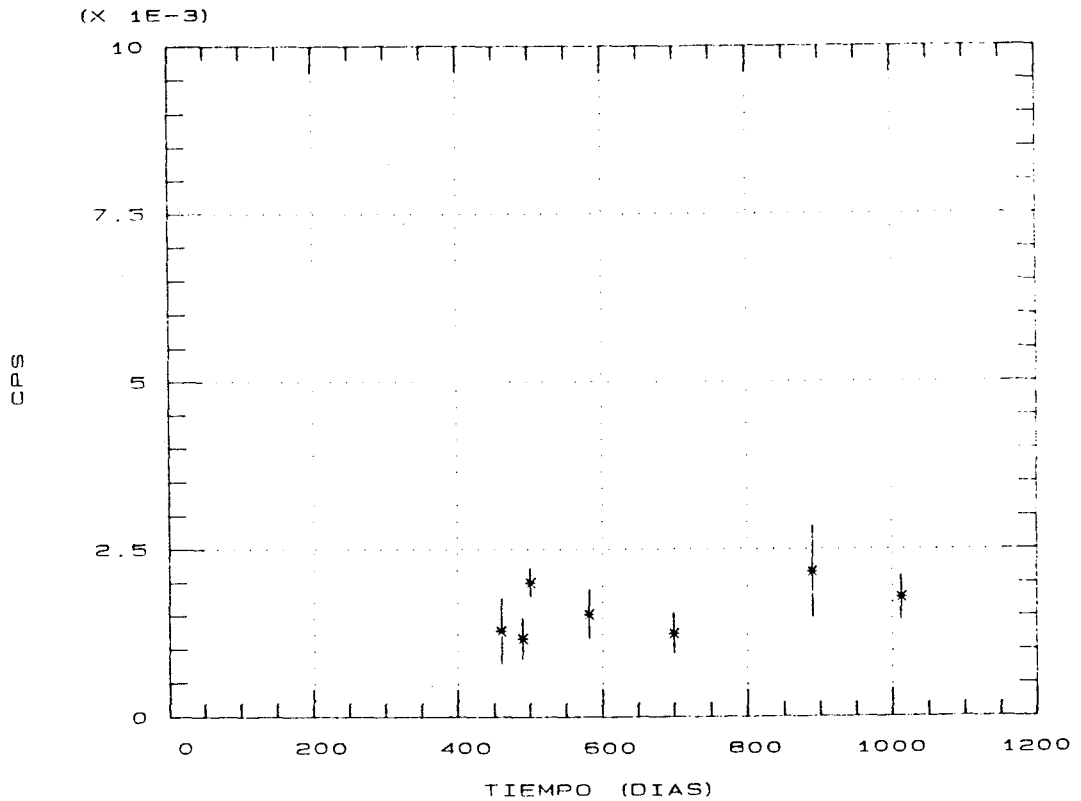


Figura 3.1.14 Variación temporal del área neta del pico de 295.2 keV en el espectro de fondo del detector LEPS.

3.2 DETECTOR ReGe.

3.2.1. Descripción del detector ReGe.

El detector ReGe es un diodo de germanio hiperpuro tipo n en geometría coaxial con un extremo cerrado, fabricado por la casa CANBERRA. Como se indicó en el apartado 2.3.2.3.3, los detectores de germanio de tipo n mantienen las prestaciones de los detectores coaxiales de Ge(Li) o de HpGe tipo p para energías por encima de 100 keV. Las principales características técnicas de este detector se muestran en la tabla 3.2.1.

Diámetro zona activa	53	mm
Longitud	60.5	mm
Area activa	22.1	cm ²
Distancia desde la ventana	5	mm
Grosor de la ventana de Be	0.5	mm
Tensión de trabajo	- 4000	V
Eficiencia relativa		
(NaI(Tl) 3"·3", 1333 keV)		
Garantizada	29	%
Medida	31.1	%
Resolución (FWHM)		
	122 keV	1333 keV
Garantizada	-	2.0
Medida	1.08 keV	1.94 keV

Tabla 3.2.1 Características técnicas del detector semiconductor ReGe.

El detector ReGe está alojado en un blindaje de plomo de 10 cm de espesor que lo rodea (a excepción de un agujero circular para comunicar el detector con el recipiente dewar del nitrógeno líquido). El espacio interior del blindaje, donde se encuentra el detector, tiene forma paralelepípedica y sus

dimensiones son 30·45·45 cm. En la parte interior del blindaje se colocaron planchas de cadmio y cobre, con espesores de 0.1 cm cada una para absorber los rayos X inducidos en el blindaje de plomo. El efecto de este blindaje adicional se comentará con más detalle en el apartado 3.2.4 dedicado al estudio del fondo del detector.

La cadena electrónica del detector ReGe está constituida por fuente de alta tensión, preamplificador, amplificador lineal, convertidor analógico digital y analizador multicanal. En la figura 3.2.1 se muestra un diagrama con la interconexión de estos módulos, que es la típica de cualquier sistema de espectrometría gamma, junto con los modelos de cada uno de los componentes.

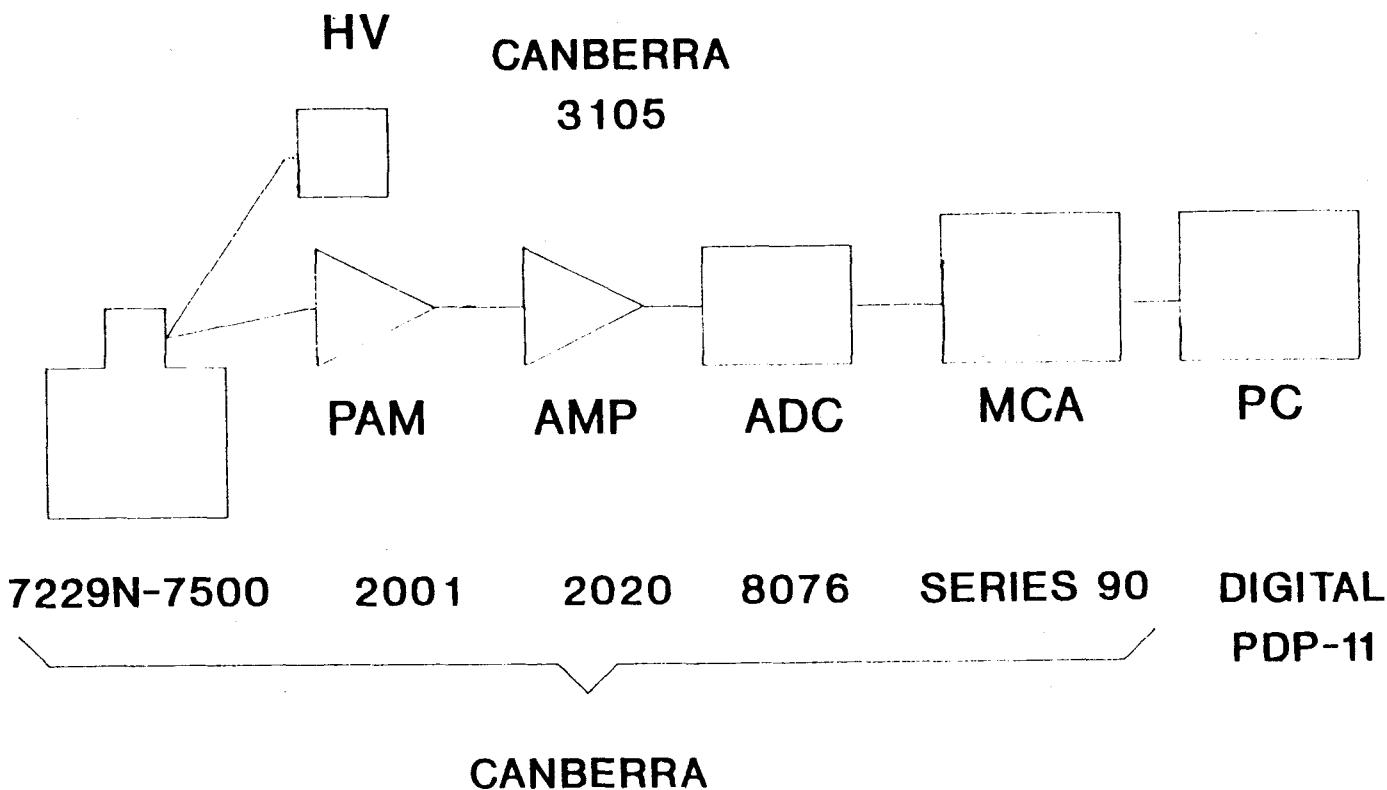


Figura 3.2.1 Diagrama de la disposición de la cadena electrónica del detector ReGe.

3.2.2 Calibración en energías.

El intervalo de energías que estudiaremos con el detector ReGe es el comprendido entre 10 y 2000 keV, donde aparecen la mayor parte de las emisiones gamma de los radionúclidos. En los apartados que siguen presentaremos los resultados obtenidos en las calibraciones sin extendernos en los detalles, que se comentaron en la sección 3.1.3.

3.2.2.1 Selección de la ganancia de conversión del ADC.

Para seleccionar la ganancia de conversión del ADC repetimos el razonamiento hecho en la calibración del sistema LEPS. La resolución garantizada en el pico de 1333 keV del ^{60}Co es de 2 keV. Para realizar el análisis de los picos es aconsejable que la FWHM tenga unos 3 o 4 canales, por lo que al menos, la relación canales/energía debe ser de 2. Por tanto, el número de canales a utilizar es de 4096.

Sin embargo, para este razonamiento hemos utilizado la resolución de un pico situado en la zona de mayores energías, donde la FWHM es mayor. Si utilizamos los parámetros anteriores los picos de menores energías tendrán FWHM mucho menores de tres canales.

Para evitar este problema recortamos el intervalo de energías de interés hasta los 1500 keV, pues en esta zona no perdemos información relevante sobre los radionúclidos presentes en la muestra. La otra solución posible, aumentar la ganancia de conversión del ADC hasta 8196 canales, no se puede efectuar por falta de memoria en el analizador multicanal. Con estas condiciones los picos de menor energía tendrán algo menos de tres canales de anchura a mitad del máximo, pero podremos observar el ^{40}K en los espectros.

3.2.2.2 Relación energía canal.

La fuente utilizada para la calibración en energías del detector ReGe es la misma que se empleó en el sistema LEPS, y contiene ^{210}Pb , ^{241}Am y el cóctel de calibración de Amersham. Dado que los intervalos energéticos que se miden con los dos detectores son distintos, lógicamente no se utilizarán los mismos fotopicos. Los centroides de los picos de calibración junto con las energías correspondientes se muestran en la tabla 3.2.2.

NUCL.	E keV	Centroide canales	Desv.Cuad. (keV)	Desv.lineal (keV)
^{210}Pb	46.52	133.44	0.008	0.051
^{241}Am	59.54	168.92	-0.025	0.014
^{109}Cd	88.04	246.62	-0.020	0.008
^{57}Co	122.07	339.45	-0.023	-0.006
^{57}Co	136.43	378.80	0.043	0.054
^{139}Ce	165.85	458.93	0.001	0.003
^{203}Hg	279.17	768.16	0.041	0.012
^{113}Sn	391.71	1075.03	-0.030	-0.081
^{85}Sr	513.99	1408.74	0.006	-0.061
^{137}Cs	661.62	1811.60	0.011	-0.060
^{88}Y	898.02	2456.67	-0.005	-0.054
^{60}Co	1173.23	3207.81	-0.031	-0.006
^{60}Co	1332.51	3642.77	0.029	0.119

Tabla 3.2.2 Desviación de los ajustes lineal y cuadrático en la calibración en energías del detector ReGe.

Las ecuaciones energía-canal que se ajustaron son de tipo lineal y cuadrático. Los parámetros de los polinomios ajustados son los siguientes (se sigue empleando la notación utilizada en la ecuación [3.3]):

Función cuadrática

Función lineal

$$A_1 = -2.393368$$

$$A_1 = -2.3297$$

$$A_2 = 0.366621$$

$$A_2 = 0.366466$$

$$A_3 = -4.450309 \cdot 10^{-8}$$

$$r = 1.0000$$

Al igual que se hizo para el sistema LEPS, se estudió a continuación la bondad de los dos ajustes. En la tabla 3.2.2 se muestran las desviaciones en energías de los dos ajustes. En la figura 3.2.2 se representan gráficamente estas mismas cantidades.

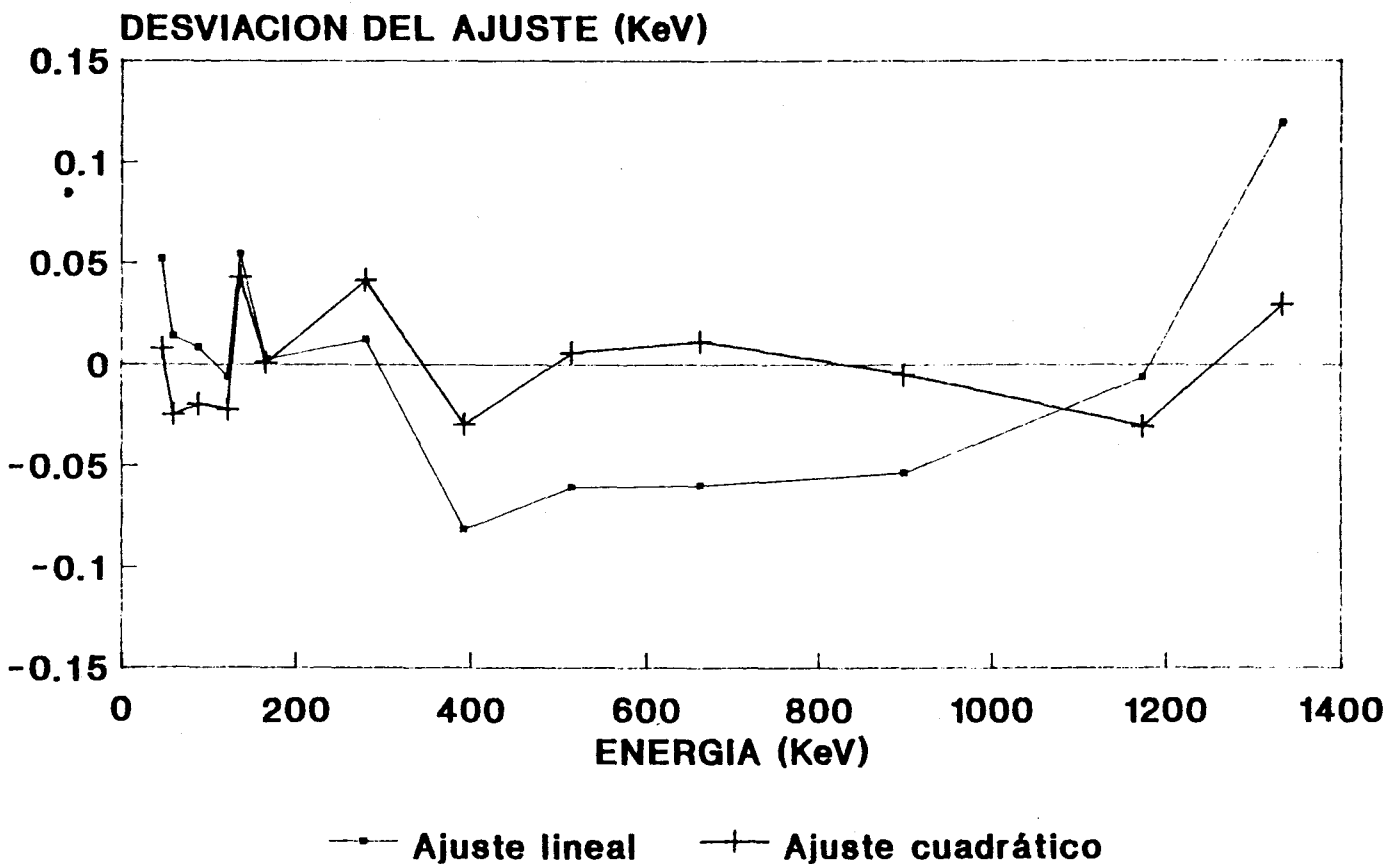


Figura 3.2.2 Desviación de la calibración en energías con ecuaciones energía canal lineal y cuadrática.

Las desviaciones encontradas entre los dos ajustes son bastante pequeñas y para nuestros propósitos serían igualmente válidas. Sin embargo, al igual que sucedía en la calibración del detector LEPS, la ecuación cuadrática da un mejor ajuste de los puntos experimentales, y será la que se utilice para los cálculos.

3.2.2.3 Resolución en energías.

La resolución energética, FWHM, medida para los picos de calibración se listan en la tabla 3.2.3, en canales y en keV. En la figura 3.2.3 se reproduce el comportamiento de la FWHM en keV frente a la energía.

NUCL.	E keV	FWHM canales	FWHM keV
²¹⁰ Pb	46.52	2.65	1.04
²⁴¹ Am	59.54	2.77	1.06
¹⁰⁹ Cd	88.04	2.85	1.10
⁵⁷ Co	122.07	2.95	1.13
⁵⁷ Co	136.43	3.01	1.14
¹³⁹ Ce	165.85	3.03	1.15
²⁰³ Hg	279.17	3.21	1.23
¹¹³ Sn	391.71	3.53	1.34
⁸⁵ Sr	513.99	3.69	1.39
¹³⁷ Cs	661.62	4.06	1.56
⁸⁸ Y	898.02	4.50	1.68
⁶⁰ Co	1173.23	4.93	1.85
⁶⁰ Co	1332.51	5.19	1.93

Tabla 3.2.3 Resolución energética del detector ReGe para los diferentes picos utilizados en la calibración en energías.

Las anchuras a mitad de máximo de los picos de calibración en función de la energía se ajustaron a una recta. Los coeficientes de dicho ajuste son:

$$\text{FWHM} = A + B \cdot E$$

$$A = 1.03957$$

$$B = 6.96166 \cdot 10^{-4}$$

$$r = 0.9966$$

La resolución en energías que hemos medido para las líneas de 122 y 1333 keV, 1.13 y 1.93 keV, concuerdan favorablemente con las medidas por el fabricante del detector, 1.08 y 1.94 (tabla 3.2.1), indicándonos que los parámetros de las cadenas electrónicas están correctamente ajustados.

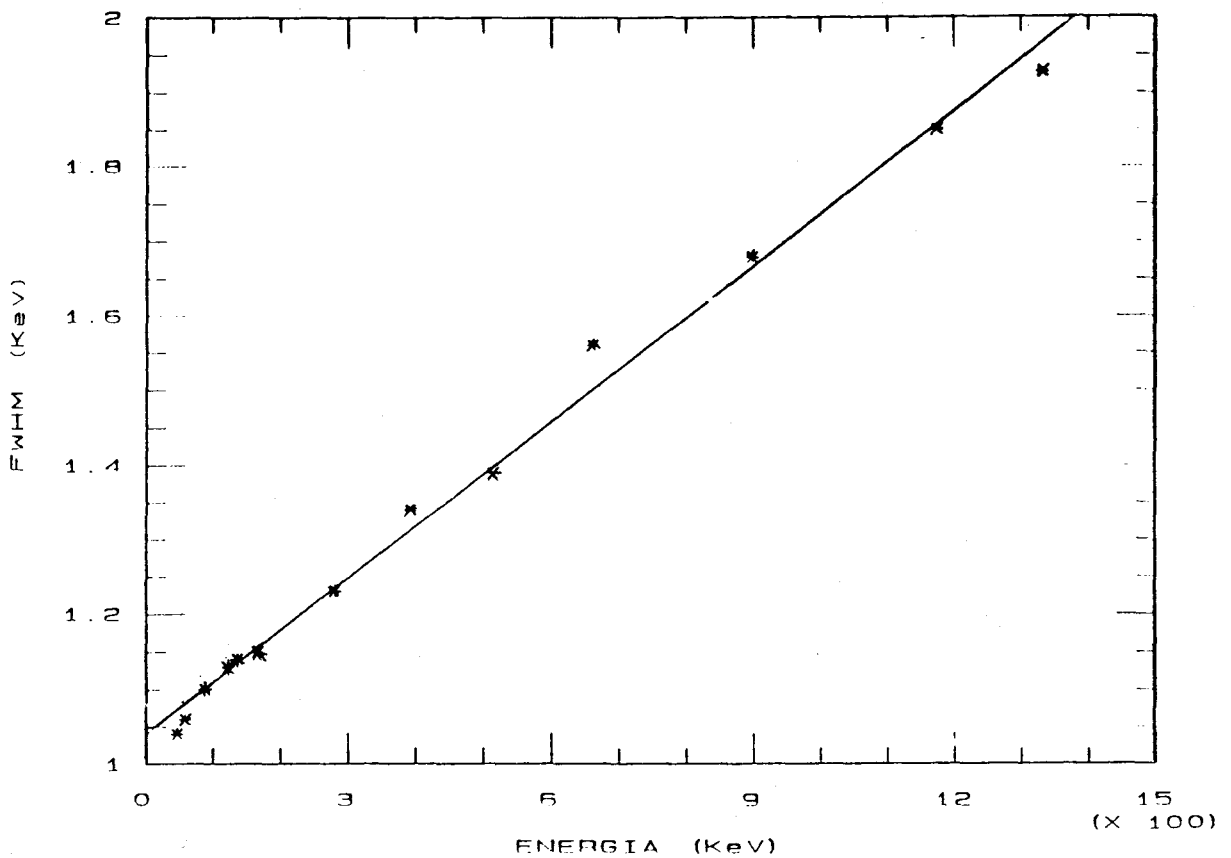


Figura 3.2.3 FWHM del detector ReGe frente a la energía.

3.2.3 Calibración en eficiencias.

Las calibraciones en eficiencias del detector ReGe son similares a las realizadas en el sistema LEPS salvo dos excepciones:

- El intervalo de energías cubierto por el detector ReGe es más amplio, 10 - 1500 keV frente a 10 - 300 keV.

- La disposición geométrica del detector y el blindaje no limita excesivamente el tamaño ni la forma de las muestras a medir, como sucedía en el sistema LEPS.

Por estas razones se empleará un mayor número de líneas gamma para la determinación de la eficiencia y se efectuarán calibraciones para diferentes geometrías de medida.

3.2.3.1 Elección de los radionúclidos.

Los radionúclidos que se emplearon para la calibración en energías del detector ReGe son los integrantes del cóctel de calibración de Amersham, que cubren el intervalo entre 88 y 1836 keV, además de ^{210}Pb y ^{241}Am , que nos darán puntos en la región de menores energías. Las características nucleares de interés de estos radionúclidos se muestran en la tabla 3.2.4. En la figura 3.2.4 se muestra un espectro del cóctel de calibración.

3.2.3.2 Geometrías de medida.

La configuración del blindaje del detector ReGe no limita seriamente el tamaño ni la forma de las muestras a medir. Por esta razón, se efectuaron calibraciones en eficiencias para diferentes recipientes, apropiados a las numerosas muestras que se han de medir. Sin embargo, para el propósito de este trabajo,

en el que sólo estamos interesados en la medida de tierras y sedimentos, expondremos las calibraciones en las geometrías utilizadas.

NUCLIDO	T _½		ENERGIA (keV)	Y (%)
²¹⁰ Pb	22.3	a	46.52	4.05
²⁴¹ Am	432.2	a	59.56	35.9
¹⁰⁹ Cd	462.9	d	88.04	3.61
⁵⁷ Co	270.9	d	122.07	85.6
			136.43	10.6
¹³⁹ Ce	137.66	d	165.85	79.9
²⁰³ Hg	46.60	d	279.17	81.5
¹¹³ Sn	115.09	d	391.71	64.2
⁸⁵ Sr	64.84	d	513.99	99.3
¹³⁷ Cs	30.17	a	661.62	85.1
⁸⁸ Y	106.64	d	898.01	94.0
⁶⁰ Co	5.271	a	1173.23	99.9
			1332.51	100.0

Tabla 3.2.4 Radionúclidos utilizados para la calibración en eficiencias del detector ReGe <REUS-83>.

Las tres geometrías de medida utilizadas son:

Placa petri. Tiene forma cilíndrica con 70 mm de diámetro y 13 mm de altura. Está fabricado en vidrio. Para cerrar este recipiente se utiliza cinta adhesiva. La capacidad de la placa petri es de 50 cm³, pudiendo albergar entre 40 y 60 g de tierras. La placa petri que se mide se sitúa sobre un portamuestras de plástico colocado encima del detector. De esta manera se aísla a éste de posibles golpes o de una eventual

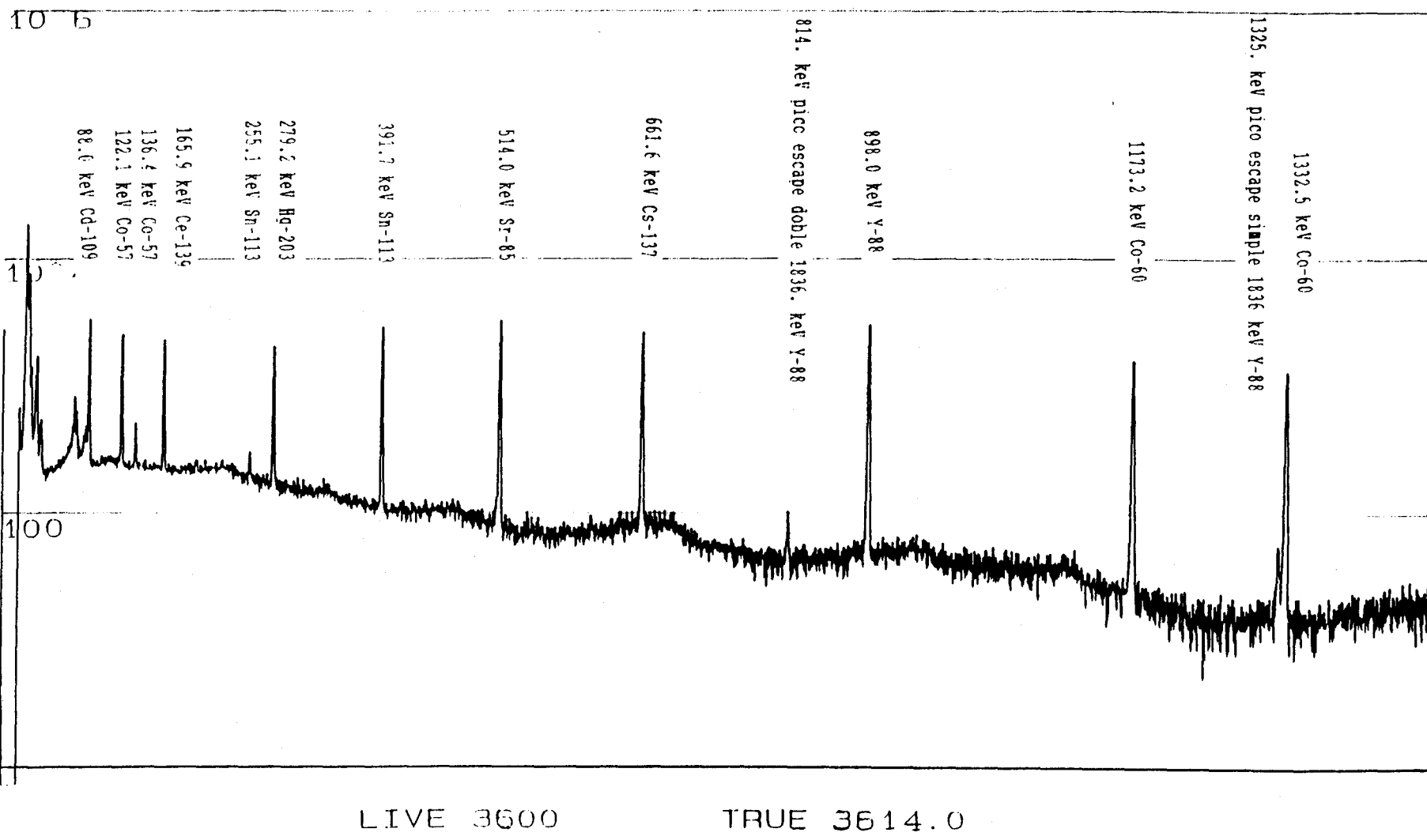


Figura 3.2.4 Espectro del cóctel de calibración.

contaminación por material de la muestra, al tiempo que se fija la posición de la muestra.

Recipiente Marinelli. Es el clásico recipiente reentrante. Proporciona una óptima distribución de la muestra alrededor del detector, maximizando el ángulo sólido entre detector y muestra y minimizando los efectos de autoabsorción. El pozo del recipiente ajusta perfectamente en el detector. Los recipientes Marinelli que utilizamos en el laboratorio tienen un volumen de 450 cm³, y están fabricados en plástico. Son idóneos para la medida de muestras voluminosas.

Plancheta LEPS. Son las cajitas cilíndricas de acetato de celulosa descritas en la sección 3.1.4.1, y se emplean principalmente para comparar resultados entre el sistema LEPS y el detector ReGe. Las placas LEPS se colocan sobre un portamuestras similar al de las placas petri.

Los detalles de la preparación de los diferentes patrones son similares a los descritos en la sección 3.1.4.3, por lo que no se repetirán aquí. Las matrices utilizadas para rellenar las muestras son una mezcla de sedimentos, al igual que en el caso del sistema LEPS.

3.2.3.3 Cálculo de las eficiencias y ajuste de la función eficiencia energía.

Los tres patrones de calibración preparados para cada geometría se miden tres veces cada uno. Sobre el conjunto de eficiencias experimentales obtenidas se calculan los valores medios, ponderándolos con la inversa del cuadrado de la incertidumbre de cada valor. Las eficiencias medias obtenidas para las tres geometrías mencionadas se muestran en la tabla 3.2.5.

La geometría que presenta una mayor eficiencia es la plancheta LEPS; su menor tamaño hace que el ángulo sólido subtendido respecto al detector sea mayor. Las eficiencias de las geometrías Petri y Marinelli no difieren en un gran factor respecto a la plancheta LEPS. En estos dos casos la muestra se encuentra cerca del detector, si bien, dado el mayor tamaño de la misma, el ángulo sólido es menor. Las diferencias de eficiencia son más acusadas en la región de bajas energías, donde el menor grosor de las muestras se traduce en una mayor eficiencia. Así se puede observar al comparar las eficiencias en geometría Petri y Marinelli: para energías mayores de 100 keV la eficiencia de la última geometría es mayor, mientras que para energías inferiores la placa Petri es más eficiente.

NUCLIDO	ENERGIA	PLAN.LEPS	PETRI G	MARINELLI
²¹⁰ Pb	46.52	-	4.85 ± 0.13	2.58 ± 0.24
²⁴¹ Am	59.56	8.55 ± 0.20	5.93 ± 0.10	4.08 ± 0.30
¹⁰⁹ Cd	88.04	8.71 ± 0.19	6.58 ± 0.14	5.69 ± 0.14
⁵⁷ Co	122.07	8.24 ± 0.19	6.31 ± 0.15	5.72 ± 0.15
	136.43	7.86 ± 0.25	6.080 ± 0.090	5.58 ± 0.18
¹³⁹ Ce	165.85	6.68 ± 0.14	5.206 ± 0.057	4.94 ± 0.14
²⁰³ Hg	279.17	3.62 ± 0.12	-	-
¹¹³ Sn	391.71	3.249 ± 0.067	2.600 ± 0.036	2.538 ± 0.066
⁸⁵ Sr	513.99	2.435 ± 0.031	1.971 ± 0.017	2.093 ± 0.085
¹³⁷ Cs	661.62	2.016 ± 0.036	1.656 ± 0.021	1.688 ± 0.042
⁸⁸ Y	898.01	1.461 ± 0.022	1.227 ± 0.015	1.203 ± 0.030
⁶⁰ Co	1173.23	1.142 ± 0.016	0.988 ± 0.013	0.976 ± 0.049
	1332.51	1.011 ± 0.013	0.891 ± 0.010	0.877 ± 0.044

Tabla 3.2.5 Valores medios de la eficiencia, en tanto por ciento, del detector ReGe para tres geometrías de medida.

Las eficiencias medias para las tres geometrías medidas se ajustaron a polinomios en función de la energía, como en la ecuación [3.6]. Los parámetros de los ajustes son los siguientes:

Plancheta LEPS

$E < 165.85 \text{ keV}$	$E > 165.85 \text{ keV}$
$n = 2$	$m = 4$
$a_0 = -12.69635$	$b_0 = 314.9528$
$a_1 = 4.686025$	$b_1 = -203.2836$
$a_2 = -0.5340686$	$b_2 = 48.75267$
	$b_3 = -5.188416$
	$b_4 = 0.2058966$

Placa Petri

$E < 165.85 \text{ keV}$	$E > 165.85 \text{ keV}$
$n = 3$	$m = 3$
$a_0 = -46.94147$	$b_0 = -5.732206$
$a_1 = 25.99298$	$b_1 = 2.645681$
$a_2 = -4.979919$	$b_2 = -0.5661650$
$a_3 = 0.3088108$	$b_3 = 0.03029847$

Marinelli

$E < 136.43 \text{ keV}$	$E > 136.43 \text{ keV}$
$n = 3$	$m = 4$
$a_0 = -84.76182$	$b_0 = 45.58736$
$a_1 = 49.54865$	$b_1 = -31.90702$
$a_2 = -9.942544$	$b_2 = 8.032156$
$a_3 = 0.6613853$	$b_3 = -0.9079435$
	$b_4 = 0.03791399$

El menor valor de E_c para la geometría Marinelli es debido a la mayor influencia de los efectos de autoabsorción.

3.2.4 Fondo del detector ReGe.

Al igual que con el sistema LEPS, se han venido recogiendo espectros de fondo con el detector ReGe desde su adquisición, en el año 1988. En las figuras 3.2.5 (a,b,c,d) se muestra un espectro típico de fondo del detector ReGe, dividido en cuatro partes para lograr una mejor visualización. El espectro de fondo se midió un total de 500000 s. Sobre éste espectro se han identificado las energías de los principales fotopicos y su procedencia. Estos mismos datos se presentan en la tabla 3.2.6. Las características más importantes del fondo de este detector son:

- La línea base del espectro va disminuyendo al aumentar la energía. Este hecho se pone de manifiesto al observar las escalas verticales de las figuras 3.2.5, que van disminuyendo de 8200 hasta 512 (la figura 3.2.5/d tiene una escala vertical mayor que la de 3.2.5/c por la prominencia del pico de 1460.8 keV del ^{40}K).

- En la parte de más bajas energías se aprecia como aumenta fuertemente la altura de la línea base a energías inferiores a 10 keV; ésto es debido a la presencia de ruidos electrónicos en la cadena de detección.

- En los intervalos energéticos entre 10 y 25 keV y entre 70 y 100 keV aparecen un gran número de líneas correspondientes a rayos X, originados tanto por fluorescencia en el blindaje de plomo y contacto de indio en el detector como por decaimiento radiactivo de núclidos de las series naturales.

- Sobre la línea base aparecen un número considerable de picos, en su mayor parte procedentes de las series radiactivas naturales del ^{238}U y ^{232}Th .

Adicionalmente se observan otros picos de la serie del ^{235}U .

- Se han identificado seis picos procedentes de reacciones nucleares provocadas por la radiación cósmica en los materiales que forman el sistema detector. Las reacciones involucradas son:

$^{115}\text{In} (n, \gamma)$	138 keV
$^{74}\text{Ge} (n, \gamma)$	138 keV
$^{70}\text{Ge} (n, \gamma)$	199 keV
$^{113}\text{Cd} (n, \gamma)$	558 keV
$^{207}\text{Pb} (n, n' \gamma)$	570 keV
$^{206}\text{Pb} (n, n' \gamma)$	803 keV
$^{56}\text{Fe} (n, n' \gamma)$	847 keV

El más significativo de todos estos picos es el de 558 keV producido en la activación del ^{113}Cd . Recordemos que en el blindaje del detector ReGe se encuentra una capa de 1 mm de espesor de cadmio, y que éste tiene una gran sección eficaz de captura neutrónica.

- Uno de los picos más importantes en el espectro de fondo es el de 511 keV, originado por la absorción de uno de los fotones producidos en el proceso de creación de pares.

ENERGIA	ORIGEN	INTENSIDAD	PROCEDENCIA
10.3	Bi L _α		
13.1	Th L _α + Bi L _β		
16.3	Th L _β		
19.4	Th L _γ		
24.2	In K _α		Fluor. detector
25.6	²³¹ Th	14.5	Serie ²³⁵ U
27.4	In K _β		Fluor. detector
39.9	²¹² Bi	1.1	Serie ²³² Th
46.5	²¹⁰ Pb	4.1	Serie ²³⁸ U
53.2	²¹⁴ Pb	1.1	"
63.3	²³⁴ Th	3.8	"
70.8	Tl K _α		
72.8	Pb K _{α2}		Fluor. blindaje
74.8	Bi K _{α2} + Pb K _{α1}		" "
77.1	Bi K _{α1}		
84.2	²³¹ Th + Pb K _{β1}	6.6	Serie ²³⁵ U, fl. blind.
87.2	Bi K _{β1} + Pb K _{β2}		Fluor. blindaje
89.8	Bi K _{β2}		
92.6	²³⁴ Th	5.4	Serie ²³⁸ U
98.4	U K _{α1}		
112.8	²³⁴ Th	0.2	Serie ²³⁸ U
138.	¹¹⁵ In (n, γ) ⁷⁴ Ge (n, γ)		Radiación cósmica
143.8	²³⁵ U + ²²³ Ra	11.0 + 3.3	Serie ²³⁵ U
163.4	²³⁵ U	5.0	"
186.	²²⁶ Ra + ²³⁵ U	3.3 + 57.1	Serie ²³⁸ U, ²³⁵ U
199.	⁷⁰ Ge (n, γ)		Radiación cósmica
209.4	²²⁸ Ac	4.5	Serie ²³² Th
238.6	²¹² Pb	43.6	"
241.9	²¹⁴ Pb	7.5	Serie ²³⁸ U
270.3	²²⁸ Ac	3.8	Serie ²³² Th
295.2	²¹⁴ Pb	19.2	Serie ²³⁸ U
300.1	²¹² Pb	3.3	Serie ²³² Th
328.0	²²⁸ Ac	3.4	"

Continúa en la siguiente página

ENERGIA	ORIGEN	INTENSIDAD	PROCEDENCIA
338.4	^{228}Ac	12.0	Serie ^{232}Th
351.9	^{214}Pb	37.1	Serie ^{238}U
463.0	^{228}Ac	4.6	Serie ^{232}Th
511.	Radiación aniquilación		Desintegración β^+
558.	^{113}Cd (n, γ)		Radiación cósmica
570.	^{207}Pb (n,n' γ)		" "
583.1	^{208}Tl	30.9	Serie ^{232}Th
609.3	^{214}Bi	46.1	Serie ^{238}U
665.5	^{214}Bi	1.6	Serie ^{238}U
727.2	^{212}Bi	6.7	Serie ^{232}Th
766.6	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	0.2	Serie ^{238}U
768.4	^{214}Bi	4.9	"
785.4	^{214}Pb + ^{212}Bi	1.1 + 1.1	Serie ^{238}U , ^{232}Th
794.8	^{228}Ac	4.8	Serie ^{232}Th
803.	^{206}Pb (n,n' γ)		Radiación cósmica
840.2	^{228}Ac	1.0	Serie ^{232}Th
847.	^{56}Fe (n,n' γ)		Radiación cósmica
860.4	^{208}Tl	4.3	Serie ^{232}Th
911.1	^{228}Ac	29.0	"
934.1	^{214}Bi	3.2	Serie ^{238}U
964.6	^{228}Ac	5.5	Serie ^{232}Th
968.9	^{228}Ac	17.0	"
1001.0	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	0.6	Serie ^{238}U
1120.3	^{214}Bi	15.0	"
1238.1	^{214}Bi	5.9	Serie ^{238}U
1377.7	^{214}Bi	4.0	Serie ^{238}U
1408.0	^{214}Bi	2.5	"
1460.8	^{40}K	10.7	Núclido Primigenio

Tabla 3.2.6 Listado de picos identificados en el espectro de fondo del detector ReGe. Se indica el origen de los picos y su procedencia. Para las emisiones gamma de radionúclidos se da la intensidad de emisión respecto al padre de la serie.

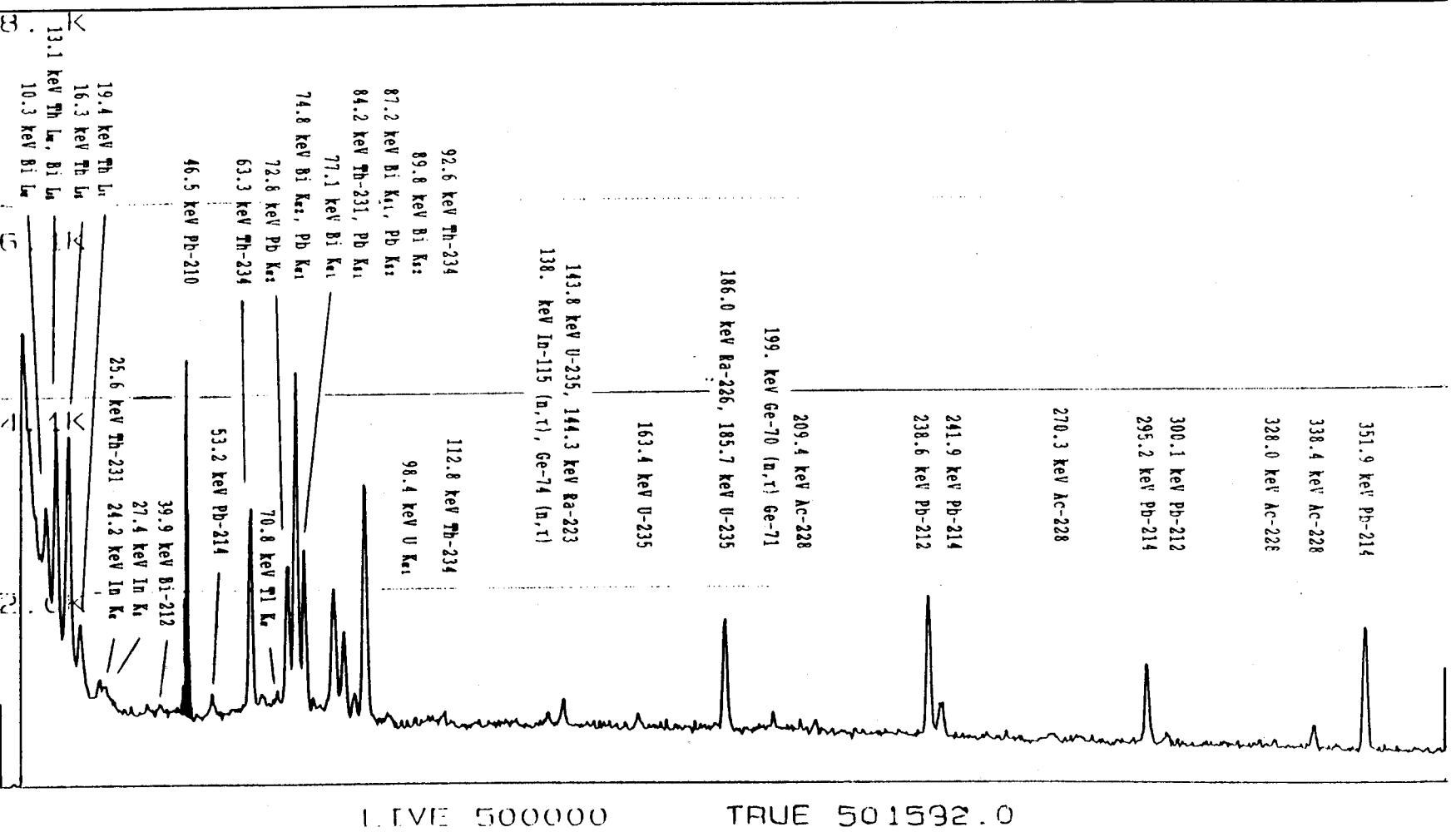


Figura 3.2.5/a Espectro de fondo del detector Rege entre 10 y 373 keV.

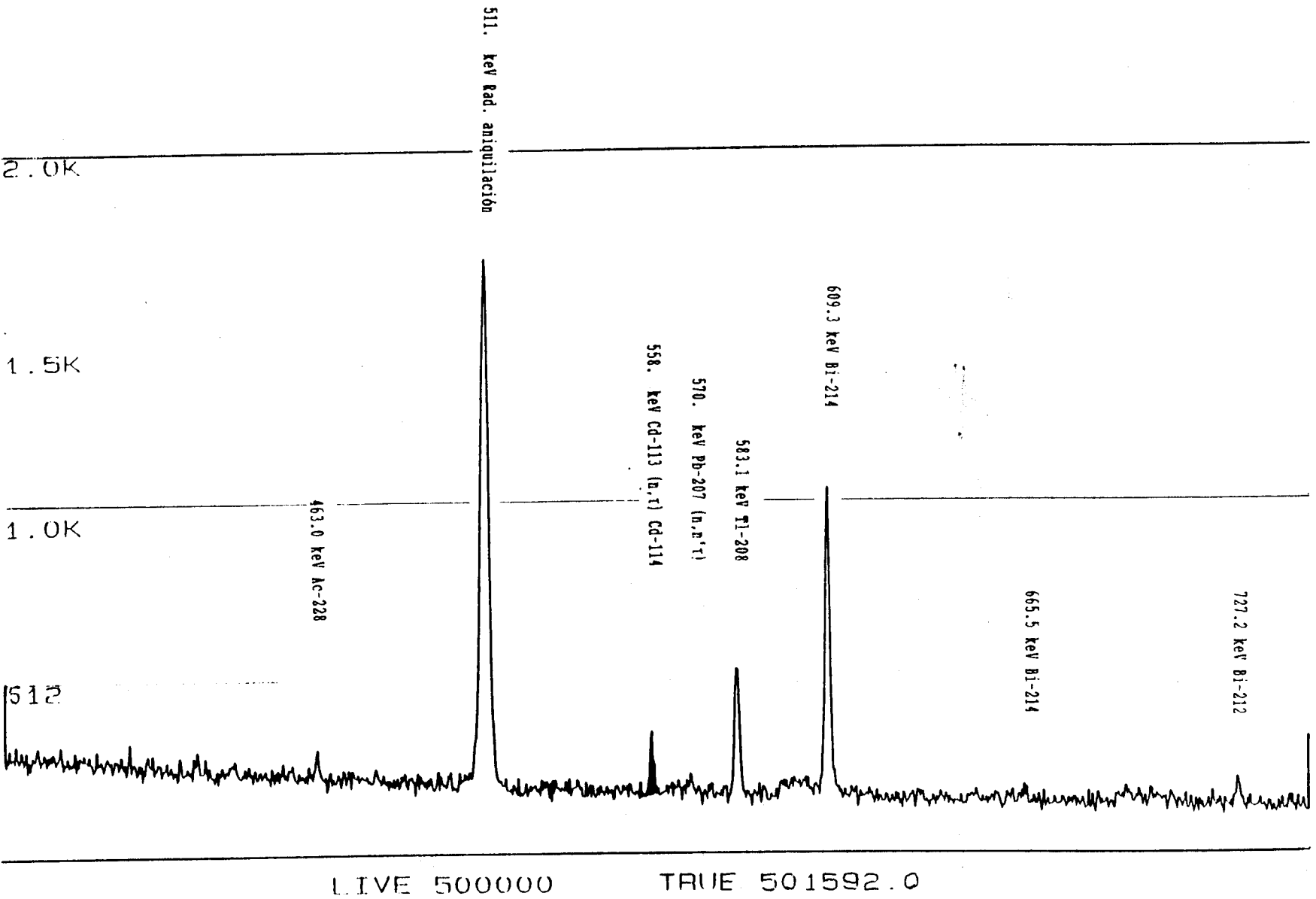


Figura 3.2.5/b Espectro de fondo del detector Rege entre 373 y 749 keV.

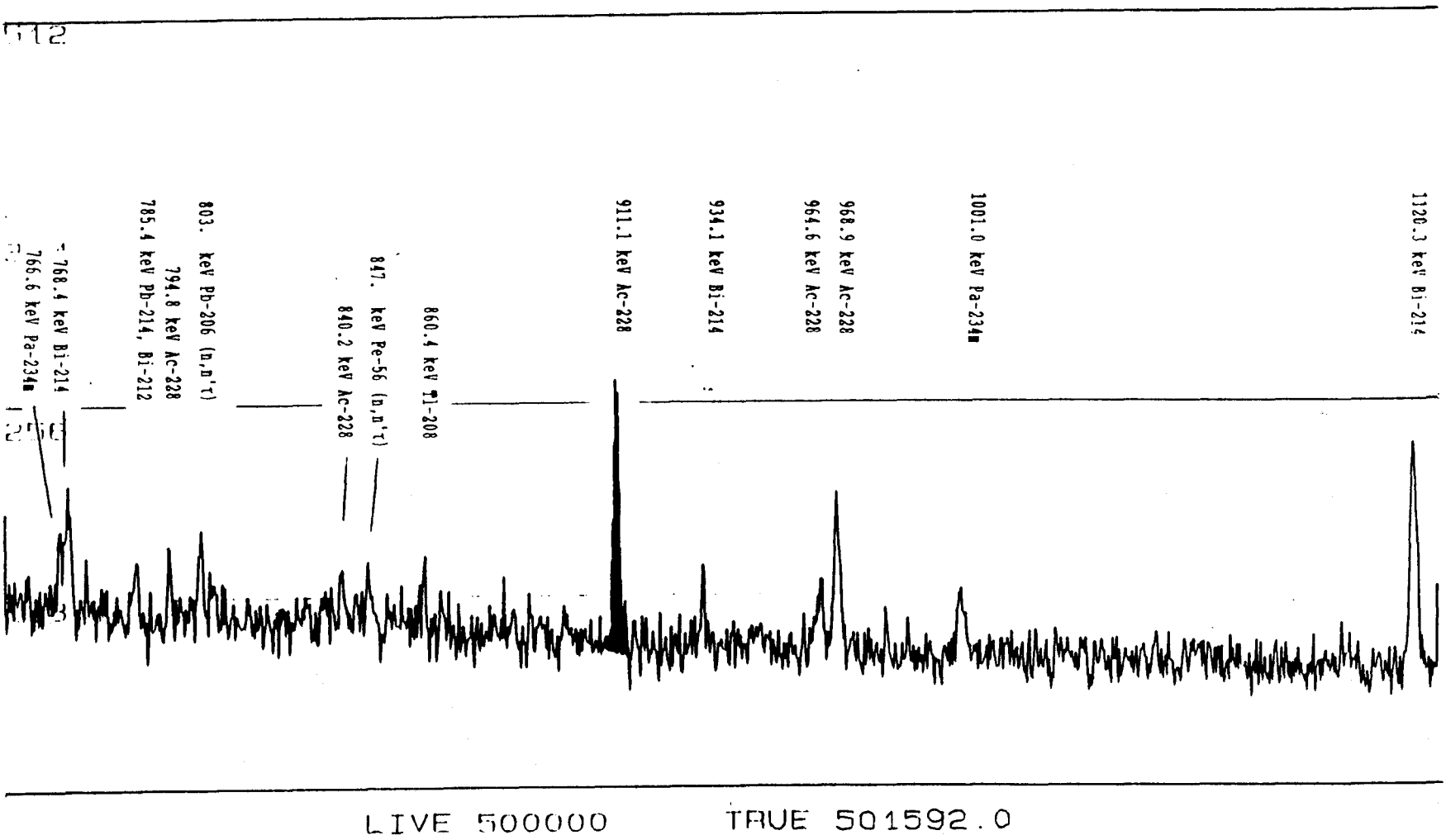


Figura 3.2.5/c Espectro de fondo del detector Rege entre 749 y 1128 keV.

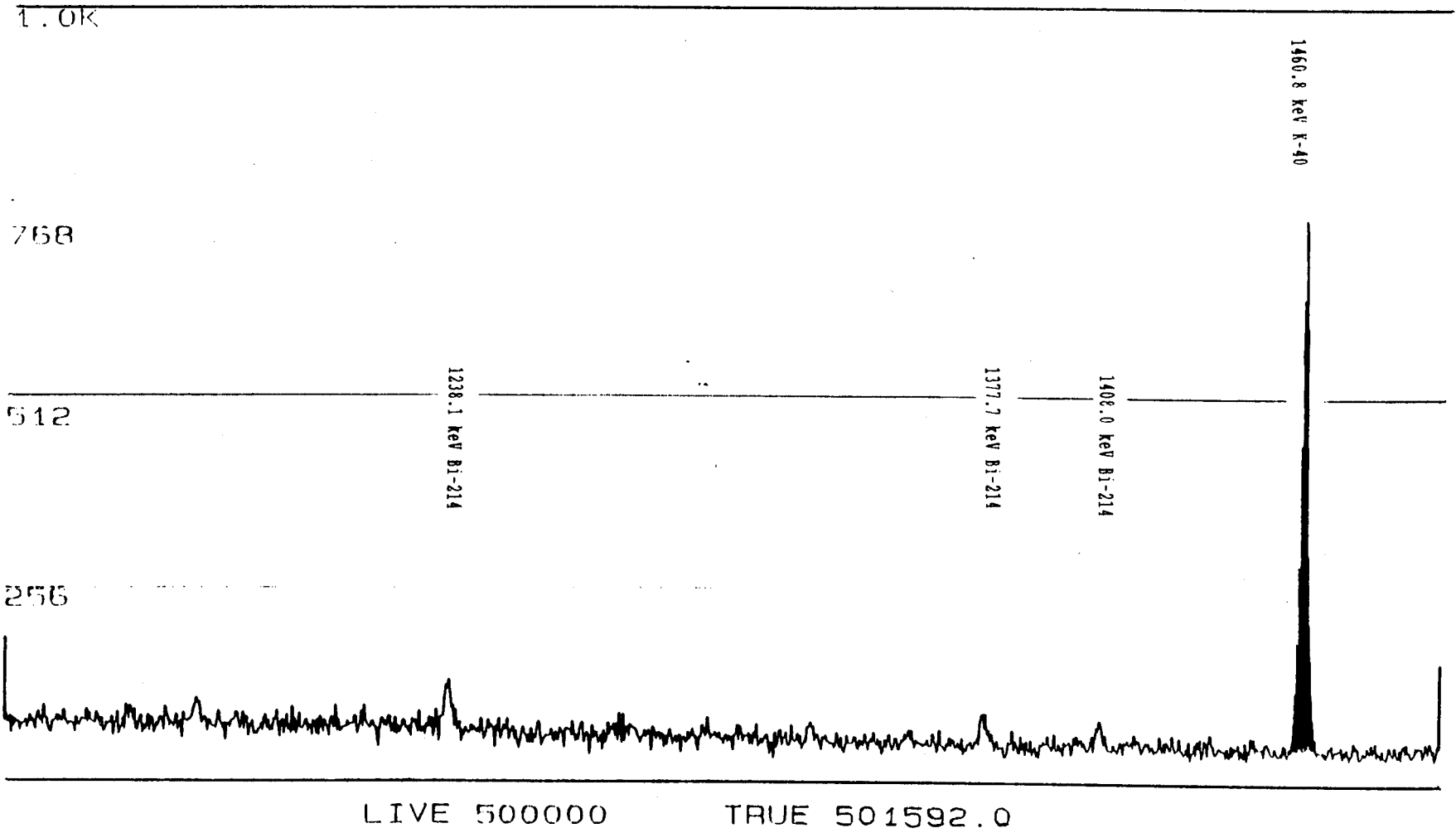


Figura 3.2.5/d Espectro de fondo del detector Rege entre 1124 y 1500 keV.

3.3 COMPARACION ENTRE LOS DOS DETECTORES.

En las secciones previas se han descrito dos sistemas detectores aptos para la medida de fotones con energías de hasta 10 keV. En esta sección haremos un estudio comparativo de éstos que nos servirá para seleccionar el detector a utilizar con cada tipo de muestras. Los parámetros que estudiaremos serán la resolución en energías, el fondo y la eficiencia; a partir de estos datos se podrán establecer los intervalos energéticos de aplicación de los dos sistemas.

3.3.1 Resolución en energías.

El sistema LEPS presenta mejor resolución energética que el detector ReGe. Este hecho no es sorprendente, al estar formado por detectores de germanio planos; los detectores con esta geometría tienen el campo eléctrico más uniforme en la región activa, por lo que el proceso de recolección de los portadores de carga es mejor y más uniforme que en los detectores con geometría coaxial.

En la tabla 3.3.1 se compara la resolución medida de los dos sistemas detectores para algunas energías de interés.

ENERGIA (keV)	NUCLIDO	FWHM LEPS (keV)	FWHM ReGe (keV)
46.52	²¹⁰ Pb	0.49	1.04
59.54	²⁴¹ Am	0.52	1.06
122.07	⁵⁷ Co	0.62	1.13

Tabla 3.3.1 Comparación de la resolución energética del sistema LEPS y del detector ReGe.

Un punto interesante a mencionar es la comparación de las ecuaciones de la resolución frente a la energía. La pendiente de la recta correspondiente al sistema LEPS es mayor que la del detector ReGe. Este hecho nos indica que, de ser extrapolable el comportamiento de la FWHM del LEPS a altas energías, para 660 keV ambos detectores presentarían la misma resolución.

3.3.2 Fondo de los detectores.

Al estar ubicados en la misma sala de contaje el sistema LEPS y el detector ReGe, los factores responsables de una diferencia en el espectro de fondo entre los dos detectores son el distinto blindaje (recordemos que el del LEPS es de hierro mientras que el del ReGe es de plomo) y el mayor tamaño del detector ReGe. Con estas consideraciones presentamos en la tabla 3.3.2 una comparación entre las tasas de cuentas de algunos picos de fondo. Los valores que aparecen en esta tabla son las tasas medias calculadas sobre el conjunto de espectros de fondo colectados con cada detector.

ENERGIA (keV)	NUCLIDO	AREA NETA (cps · 10 ⁻³)		
		LEPS	ReGe	ReGe/LEPS
46.5	²¹⁰ Pb	3.65 ± 0.53	21.81 ± 0.92	6.0
63.3	²³⁴ Th	8.13 ± 0.41	12.35 ± 0.30	1.5
92.6	²³⁴ Th	11.0 ± 1.1	17.8 ± 1.5	1.6
186.0	²²⁶ Ra + ²³⁵ U	2.86 ± 0.60	8.38 ± 0.71	2.9
238.6	²¹² Pb	2.32 ± 0.25	12.02 ± 0.85	5.2
295.2	²¹⁴ Pb	1.62 ± 0.37	5.7 ± 2.3	3.5

Tabla 3.3.2 Valores medios del área neta de algunos picos del fondo de los detectores LEPS y ReGe.

A la vista de los datos de la tabla 3.3.2 se observa claramente que los picos de fondo son más importantes en el detector ReGe que en el sistema LEPS. Las diferencias entre las tasas de cuentas varían desde un factor 1.5, para los dos picos del ^{234}Th , hasta un factor 6 para la línea gamma del ^{210}Pb . Los valores dispares de este factor sugieren que no es el mayor tamaño del detector ReGe el único responsable del aumento de la tasa de recuento de los picos de fondo. En efecto, el plomo de su blindaje debe contener cantidades significativas de ^{210}Pb , ^{232}Th y ^{226}Ra . Estos radionúclidos naturales son frecuentemente encontrados en los minerales de plomo.

El blindaje de hierro del sistema LEPS muestra una menor concentración de impurezas radiactivas. Por esta razón, el siguiente detector de germanio tipo n que se adquirió en nuestro laboratorio (septiembre de 1989) fue alojado en un blindaje de hierro. Los valores de las tasas de cuentas en los picos señalados anteriormente disminuyeron notablemente. La razón entre las tasas de cuentas de fondo de los seis picos de la tabla 3.3.2 para el detector ReGe con blindaje de plomo y el de hierro varía entre 10 para las líneas del ^{210}Pb y ^{234}Th hasta 1.1 para el pico de 295.2 keV del ^{214}Pb . Teniendo en cuenta que el detector nuevo, con blindaje de hierro, tiene mayor volumen que el del blindaje de plomo se concluye la existencia de impurezas radiactivas en el blindaje de plomo del segundo.

3.3.3 Eficiencia y sensibilidad.

La comparación entre las eficiencias de recuento de los detectores LEPS y ReGe se hará en base a la calibración en la geometría de plancheta LEPS con 12 g de sedimentos, con objeto de unificar la geometría. Los valores correspondientes de las eficiencias se encuentran en las tablas 3.1.7 para el detector LEPS y en la 3.2.5 para el ReGe. En la figura 3.3.1 se muestran las dos curvas de calibración ajustadas para esta geometría con los dos detectores.

El detector LEPS presenta una mayor eficiencia para energías inferiores a los 136 keV aproximadamente. A partir de esta energía su eficiencia disminuye más rápidamente al aumentar la energía. Este comportamiento se puede explicar en base al menor tamaño de los detectores planos que constituyen el sistema, que hace que la probabilidad de interacción de los fotones más energéticos sea pequeña.

EFICIENCIA

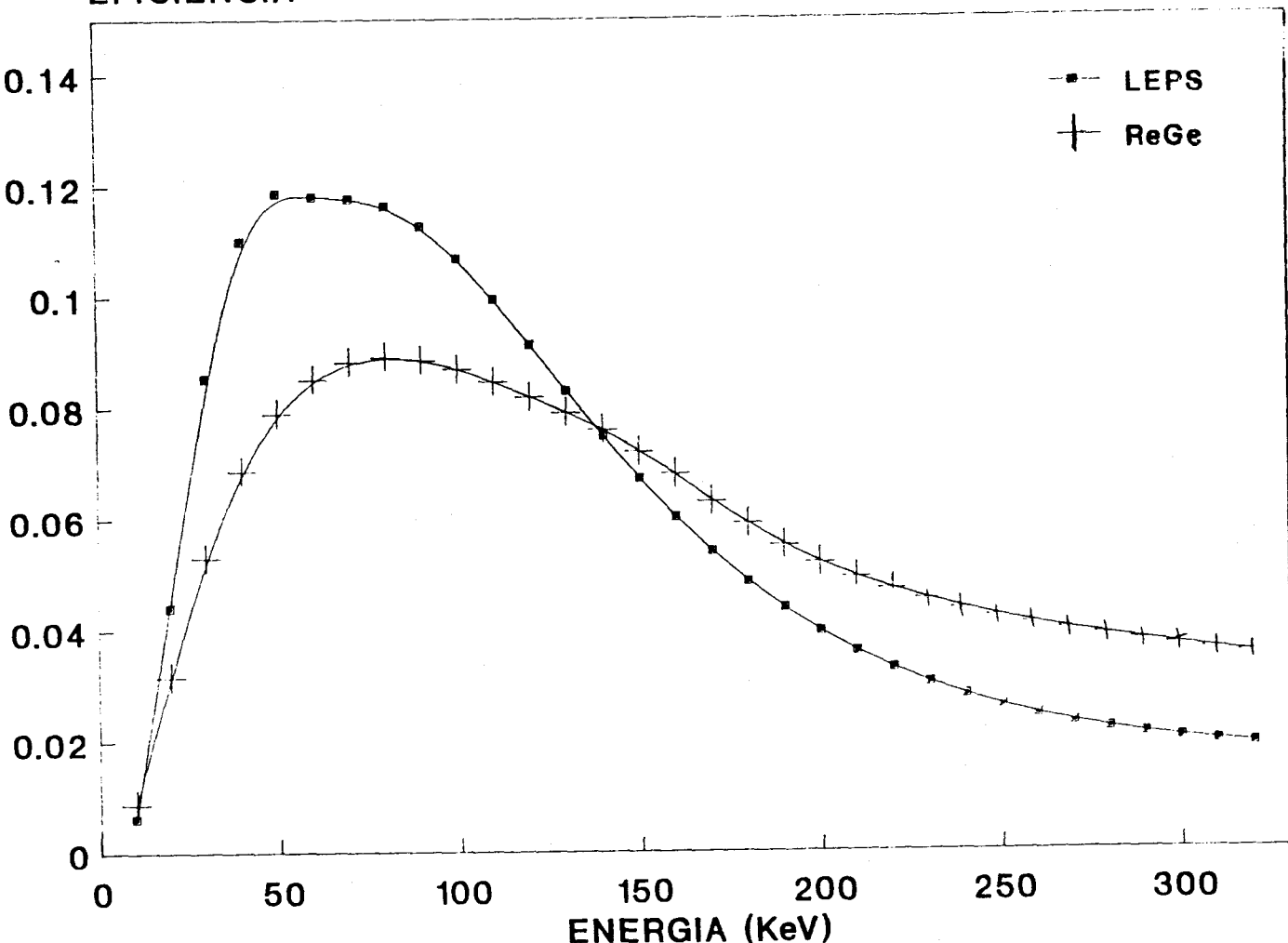


Figura 3.3.1 Curvas de calibración en eficiencias para la geometría de planchetas LEPS con 12 g de sedimentos para los detectores LEPS y ReGe.

Por otro lado, la curva eficiencia frente a energía del detector ReGe muestra un comportamiento más suave; la disminución de la eficiencia al aumentar la energía no es tan drástica como

en el caso del detector LEPS. Llegados a este punto se puede confirmar la superioridad del detector ReGe a la hora de medir emisores gamma con energías por encima de los 136 keV.

Al hablar de las distintas sensibilidades de los dos detectores debemos recordar los factores principales que se encuentran implicados, y que son eficiencia, fondo y tamaño de la muestra. En cuanto a las eficiencias, ya se hizo la comparación, resultando ser favorable al detector ReGe para energías superiores a los 136 keV. Respecto al fondo, importante a la hora de determinar elementos naturales, resulta favorecido el sistema LEPS. Por último, el tamaño de la muestra a medir es un factor de gran importancia, que desgraciadamente se encuentra limitado en el sistema LEPS. Las muestras a medir en este detector no pueden superar los 20 g, mientras que en el detector ReGe se pueden medir hasta unos 700 g en la geometría Marinelli.

Resumiendo los razonamientos de esta apartado podemos indicar que para las muestras de pequeño tamaño en las que sólo interesa la determinación de emisores gamma poco energéticos (energías por debajo de los 200 keV) resulta más favorable el empleo del sistema LEPS, mientras que el detector ReGe se utilizará en aquellos casos donde la determinación de emisores gamma con energías superiores a los 200 keV sea necesaria y en aquellas muestras en las que las concentraciones de los radionúclidos de interés sean presumiblemente muy bajas y recomienden utilizar mayores tamaños de muestras.

3.4 ESTUDIO DE LA INFLUENCIA DE LA AUTOABSORCION EN LAS CURVAS DE EFICIENCIA.

La medida de fotones con energías inferiores a los 200 keV requiere la consideración de su reducido poder de penetración. A la hora de calcular tasas de emisión cobra especial importancia la atenuación de los fotones por la propia muestra, conocida por autoabsorción.

Las diferentes características de absorción de los fotones quedan recogidas en los coeficientes de atenuación, que se encuentran tabulados para los elementos y para los compuestos más comunes <STORM-67>, <HUBBELL-82>.

El problema con el que nos encontramos es el siguiente: tenemos una muestra problema medida en la misma configuración geométrica que las muestras de calibración aunque su composición y densidad no tienen por qué ser iguales; ¿qué correcciones tendremos que efectuar a la curva de eficiencia para su aplicación a la muestra problema?

3.4.1 Revisión bibliográfica.

Han sido diferentes las maneras de abordar la problemática de la autoabsorción de fotones en la literatura. A continuación expondremos brevemente las actuaciones más importantes, entre las que distinguiremos los enfoques teóricos y experimentales.

3.4.1.1 Enfoques teóricos.

Los cálculos teóricos de la atenuación de los fotones al atravesar la muestra comprenden el planteamiento de la ecuación de transmisión de fotones y su resolución, bien por

Nakamura es el primer autor en incluir los efectos de la autoabsorción de los fotones en el cálculo teórico de la eficiencia absoluta y de la función respuesta de detectores de NaI(Tl) <NAKAMURA-70>, <NAKAMURA-72> y Ge(Li) <NAKAMURA-75>. Se emplean tanto la integración numérica como el método de Monte Carlo. Las aplicaciones de estos trabajos son la medida de muestras cilíndricas de diversos elementos puros (C, Mg, Al, Mn, Fe, In) previamente sometidas a activación neutrónica. El intervalo de energías de trabajo es desde 200 a 3000 keV.

La aplicación del método de Monte Carlo al cálculo de la eficiencia de detectores de germanio de tipo plano, incluyendo correcciones por autoabsorción es llevado a cabo por Rieppo. Las muestras medidas, de forma cilíndrica, son soluciones acuosas, y el intervalo de energías va desde 30 a 600 keV <RIEPPPO-81>.

Finalmente, se ha calculado el factor de autoabsorción para los recipientes Marinelli, de empleo frecuente en medidas ambientales, en muestras acuosas aplicando el método de Monte Carlo <NAKAMURA-83>.

Los cálculos teóricos presentan una gran dificultad matemática, debido tanto al complejo fenómeno de la interacción de los fotones con la materia como a la disposición geométrica muestra detector. Adicionalmente, estos cálculos se han aplicado a muestras de composiciones relativamente simples, y conocidas. Su aplicación a muestras complejas exigiría el conocimiento de la composición elemental de la misma para la evaluación previa de los coeficientes de atenuación.

Entre los métodos teóricos incluiremos también los basados en la integración numérica de eficiencias puntuales, que pueden incluir los efectos de autoabsorción <NOGUSHI-81>.

3.4.1.2 Enfoques experimentales.

La aproximación más inmediata al problema consiste en utilizar la matriz de las muestras problema para la preparación de las muestras de calibración. De esta manera se consigue reproducir el comportamiento de las muestras a medir en los patrones de calibración, evitándose la necesidad de correcciones por autoabsorción. Este es el caso de Lau et al. en la medida de ^{234}Th en minerales de uranio <LAU-82>. Este método tiene el inconveniente, en el caso de medirse muestras de diferentes orígenes, de requerir una curva de eficiencias para cada tipo de muestra.

Wilson propone un método de determinación de actividades independiente de la autoabsorción en muestras cilíndricas, medidas con un detector de germanio plano, en el intervalo de energías entre 30 y 300 keV <WILSON-80>. El método hace uso de varias medidas de la muestra, en una matriz arbitraria, y del patrón, en solución acuosa, en diferentes volúmenes para la determinación de la actividad. El principal inconveniente del método es la necesidad de realizar varias medidas de las muestras.

Una aproximación más sencilla es la que realizan Appleby et al. para la medida de ^{210}Pb en turbas y sedimentos con detectores HpGe tipo pozo y plano <APPLEBY-87>. Estos autores ajustan la relación empírica entre las eficiencias a 46 keV del ^{210}Pb y a 352 keV del ^{214}Pb para muestras patrones de diferentes pesos a la función:

$$\frac{\text{eff}(46 \text{ keV})}{\text{eff}(352 \text{ keV})} = A \cdot \exp(b \cdot W) \quad [3.7]$$

donde A y b son parámetros ajustables y W el peso de la muestra. La eficiencia para 352 keV se calcula a partir de una curva de calibración normal.

El método de las adiciones estándar ha sido empleado para la determinación de ^{210}Pb por espectrometría gamma <BLAND-85>. Este método consiste en realizar medidas de varias alícuotas de la muestra a las que se han añadido actividades conocidas del elemento problema. Ajustando a una línea recta los valores de las áreas netas observadas frente a la actividad añadida se puede conocer la actividad de la muestra sin necesidad de preparación de patrones ni correcciones por autoabsorción. Las desventajas del método de las adiciones estándar son la necesidad de varias medidas, la manipulación de soluciones radiactivas y su carácter destructivo.

En los últimos años ha aparecido un nuevo método en la literatura, el de transmisión, en el que se calcula el factor de autoabsorción mediante la comparación de la transmisión de un haz de fotones a través de la muestra y del patrón de calibración. Como se hará uso del método de transmisión en el análisis de las muestras presentadas en el capítulo 4, su descripción se realizará en el siguiente apartado.

3.4.2 Método de transmisión.

El método de transmisión fue propuesto por primera vez por Cutshall et al. para la determinación de ^{210}Pb en sedimentos <CUTSHALL-83>. Desde entonces ha sido aplicado por varios autores no sólo para la medida de ^{210}Pb <JOSHI-87a> sino para ^{241}Am <LARSEN-83>, <JOSHI-89> y otros emisores naturales gamma de baja energía <JOSHI-87b>.

Colocamos una fuente circular de un emisor gamma de baja energía (^{210}Pb o ^{241}Am) sobre el material de calibración (metido en el recipiente de medida), lo situamos sobre el detector y medimos. La atenuación de los fotones emitidos por la fuente al atravesar el material de calibración, si se supone una incidencia normal, se puede describir con la ecuación:

$$C' = I \cdot e^{-\mu_1 L} \quad [3.8]$$

donde I es la intensidad de la fuente, C' es la intensidad atenuada, μ_1 es el coeficiente lineal de atenuación del material de calibración para la energía emitida por la fuente y L es el grosor de la muestra de calibración.

Análogamente, si ahora situamos la muestra entre el detector y la fuente radiactiva obtendremos:

$$S' = I \cdot e^{-\mu_2 L} \quad [3.9]$$

siendo S' la intensidad atenuada por la muestra y μ_2 su coeficiente lineal de atenuación.

De las ecuaciones [3.8] y [3.9] obtenemos:

$$\frac{S'}{C'} = e^{-(\mu_2 - \mu_1)L} \quad [3.10]$$

Por otra parte, la autoabsorción relativa de los fotones procedentes del emisor gamma, homogéneamente distribuido en la muestra y el material de calibración, se obtiene integrando la ecuación [3.10] a lo largo del grosor de la muestra, considerando cada vez finas capas de espesor dx:

$$\frac{S}{C} (L-0) = \int_0^L e^{-(\mu_2 - \mu_1)x} dx$$

$$\frac{S}{C} = \frac{1 - e^{-(\mu_2 - \mu_1)L}}{(\mu_2 - \mu_1)L}$$

donde S es el número de fotones que atraviesan la muestra problema y C la muestra de calibración. Sustituyendo de la



ecuación [3.10] obtenemos finalmente:

$$C=S \cdot \frac{\ln \frac{C'}{S'}}{1 - \left(\frac{S'}{C'}\right)} \quad [3.11]$$

El cociente C/S es el factor de autoabsorción relativa entre el patrón de calibración y la muestra. Para calcular la actividad corregida por autoabsorción emplearemos:

$$A = \frac{cps_s}{M \cdot Y \cdot eff_s} = \frac{cps_c}{M \cdot Y \cdot eff_c}$$
$$eff_s = \frac{S}{C} eff_c \quad [3.12]$$

donde cps_s es el valor del área neta por unidad de tiempo de la muestra problema en su propia matriz, cps_c es el área neta por unidad de tiempo que daría la muestra problema si tuviese la misma matriz que las muestras de calibración (ésto es, las mismas características de autoabsorción); eff_s y eff_c son las eficiencias de la muestra problema y del patrón de calibración respectivamente.

La derivación de las ecuaciones [3.10] y [3.11] se ha realizado bajo la hipótesis, ya mencionada antes, de colimación de los fotones medidos. En efecto, a la hora de estudiar la transmisión de los fotones tan sólo hemos considerado aquellas trayectorias paralelas al eje del detector y la muestra, descartando las oblicuas. Este hecho ha sido mencionado recientemente por Miller, que realiza un estudio crítico del método <MILLER-87>. Miller encuentra que este efecto, que tiende a sobrevalorar el factor de autoabsorción, se compensa por el hecho de ser los fotones emitidos más cerca del detector los que tienen más probabilidad de ser detectados, al subtender mayores ángulos sólidos.

La solución al problema de la autoabsorción que se ha

aplicado en esta memoria ha sido la preparación de patrones de calibración para los distintos tipos de muestras. Para comprobar que dentro de cada grupo de muestras la autoabsorción es similar a la de las muestras de calibración se realizan dos medidas de transmisión, empleándose fuentes radiactivas de ^{210}Pb y ^{241}Am .

Los resultados obtenidos muestran la similitud entre muestras y patrones de calibración. En la tabla 3.4.1 se muestran los factores de autoabsorción para 46.5 y 59.5 keV, calculados por el método de transmisión, para las muestras del núcleo de sedimentos PA-16, cuyo análisis se presenta en la sección 4.1.4.3.

SECCION	C/S 46.5 keV	C/S 59.5 keV
0-1	1.018 ± 0.011	1.007 ± 0.015
1-2	1.018 ± 0.012	0.998 ± 0.011
2-3	1.050 ± 0.009	1.020 ± 0.016
3-4	1.010 ± 0.014	1.007 ± 0.015
4-5	1.041 ± 0.010	1.037 ± 0.016
5-6	1.018 ± 0.014	1.025 ± 0.011
6-7	1.031 ± 0.019	1.008 ± 0.015
7-8	1.025 ± 0.012	0.994 ± 0.014
8-9	1.042 ± 0.014	1.034 ± 0.011
10-11	1.034 ± 0.010	1.026 ± 0.016
12-13	1.020 ± 0.010	1.032 ± 0.016
14-15	1.032 ± 0.009	1.024 ± 0.016
16-17	1.048 ± 0.009	1.027 ± 0.011
18-19	1.006 ± 0.019	1.021 ± 0.016
20-21	1.057 ± 0.012	1.048 ± 0.017
Media	1.030 ± 0.015	1.021 ± 0.015

Tabla 3.4.1 Valores del coeficiente de autoabsorción para 46.5 y 59.5 keV de las muestras del núcleo de sedimentos PA-16, calculados con el método de transmisión.

De los resultados presentados en la tabla 3.4.1 se puede apreciar los valores próximos a la unidad de los coeficientes de autoabsorción para la totalidad de las muestras. Los valores de la corrección son inferiores al 5 %, a excepción de la última muestra. Este hecho indica las parecidas respuestas de las muestras y de los patrones de calibración a los fotones de baja energía.

3.4.3 Ensayos con muestras de distinta composición y densidad.

Para el estudio empírico de los efectos de la autoabsorción en las curvas de eficiencia se preparó un grupo de muestras cuyas matrices estaban formadas por alúmina, Al_2O_3 , y diez proporciones diferentes de óxido de plomo, PbO (desde el 0 al 30 % en peso). El objetivo del estudio era valorar la influencia de la composición y de la densidad en la eficiencia y contemplar la utilización de materiales sintéticos para la preparación de patrones de calibración <MARTINEZ-88c>.

En un recipiente de plástico de 500 ml de capacidad se añadieron 50 g de Al_2O_3 . Posteriormente se añadieron cantidades conocidas de soluciones calibradas de ^{210}Pb y ^{75}Se . Se esperó hasta que la alúmina marcada se hubiera secado a temperatura ambiente antes de proceder a homogeneizar los radionúclidos añadidos, con ayuda de un agitador mecánico.

Independientemente se prepararon diez recipientes conteniendo Al_2O_3 y diferentes proporciones de PbO , denominados D-0 a D-9. Se homogeneizaron las mezclas por agitación mecánica y se añadieron cantidades conocidas, por pesada, de la alúmina marcada (una vez seca). Se volvieron a homogeneizar los recipientes. Con el contenido de cada recipiente se llenaron tres planchetas LEPS, ya descritas anteriormente. El peso de cada plancheta fue anotado y se procedió a la medida de las muestras con el sistema LEPS.

En la tabla 3.4.2 se muestran la proporción en peso de PbO, el peso y la densidad aparente de cada plancheta preparada. Se puede observar que para cada grupo con igual proporción de PbO las densidades no son siempre similares, dándose casos de muestras con menor contenido de PbO y mayor densidad. Esta circunstancia es debida al diferente grado de compactación de las muestras.

El intervalo de densidades aparentes (masa dividido por volumen) de las muestras preparadas varía desde 1.02 hasta 1.52 gcm³, mientras que la proporción de PbO lo hace desde 0 al 30 % en peso. Los valores del número atómico medio de cada una de las muestras presentan una pequeña variación, de 10 a 12.5. También se puede destacar el hecho de haber grupos de muestras con proporciones de PbO muy parecidas, como son los casos de D-5 y D-6 por una parte, y D-7 y D-8 por otra.

Cada plancheta fue medida tres veces, y se obtuvieron las eficiencias medias de estas tres medidas. Estos resultados se presentan en la tabla 3.4.3, agrupados según la composición de las muestras, en orden de proporciones crecientes de PbO. El intervalo de energías medido comprende hasta 200 keV. Las incertidumbres que acompañan a los resultados corresponden a la desviación estándar de la media. Del conjunto de muestras medido se rechazaron dos, D6/1 y D8/1, por presentar resultados estadísticamente aberrantes.

Muestra	PbO (%) peso	Z media	Subm.	Peso (g)	Densidad (g/cm ³)
D-0	0	10.0	1	17.012	1.058
			2	16.267	1.012
			3	18.198	1.132
D-1	5.02	10.3	1	18.675	1.161
			2	18.695	1.163
			3	19.078	1.186
D-2	8.46	10.6	1	19.208	1.195
			2	19.109	1.188
			3	19.395	1.206
D-3	12.76	10.9	1	19.698	1.225
			2	20.684	1.286
			3	19.225	1.196
D-4	16.31	11.2	1	20.621	1.282
			2	21.263	1.322
			3	20.050	1.247
D-5	19.64	11.5	1	21.310	1.308
			2	20.271	1.323
			3	20.636	1.298
D-6	20.12	11.5	1	21.029	1.325
			2	21.269	1.261
			3	20.867	1.283
D-7	27.28	12.2	1	22.711	1.412
			2	22.376	1.392
			3	21.934	1.364
D-8	26.72	12.2	1	21.062	1.310
			2	22.861	1.422
			3	24.447	1.520
D-9	29.67	12.5	1	20.929	1.302
			2	20.913	1.301
			3	21.421	1.332

Tabla 3.4.2 Composición, peso, densidad aparente y número atómico medio de las muestras de Al₂O₃ + PbO.

El primer hecho que resalta de la tabla 3.4.3 es la disminución de las eficiencias, para todas las energías, a medida que aumenta la proporción de PbO en la plancheta. Esta disminución no se mantiene para cada conjunto de muestras con la misma composición, debido con toda seguridad a la diferencia en densidades, que se comentó con anterioridad. Se pueden señalar los casos de las muestras de los grupos D7 y D8, con menores proporciones de PbO que el grupo D9 y con eficiencias inferiores.

MUESTRA	ENERGIA (keV)						
	% PbO	46.5	66.1	96.7	121.1	136.6	198.6
D-0	0 %	9.14 ± 0.28	10.63 ± 0.29	10.64 ± 0.31	8.22 ± 0.18	7.14 ± 0.14	3.56 ± 0.13
D-1	5.02 %	8.14 ± 0.32	10.31 ± 0.41	9.96 ± 0.34	7.98 ± 0.25	6.96 ± 0.20	3.41 ± 0.27
D-2	8.46 %	7.40 ± 0.56	9.71 ± 0.75	9.34 ± 0.64	7.59 ± 0.51	6.67 ± 0.20	3.37 ± 0.19
D-3	12.76 %	6.79 ± 0.39	9.29 ± 0.44	8.78 ± 0.43	7.50 ± 0.44	6.61 ± 0.25	3.33 ± 0.14
D-4	16.31 %	5.93 ± 0.29	8.49 ± 0.33	7.79 ± 0.31	6.83 ± 0.22	6.17 ± 0.20	3.30 ± 0.15
D-6	19.64 %	5.81 ± 0.30	8.55 ± 0.25	7.85 ± 0.31	6.86 ± 0.18	6.21 ± 0.17	3.25 ± 0.11
D-5	20.12 %	5.38 ± 0.20	8.21 ± 0.34	7.40 ± 0.21	6.58 ± 0.12	5.97 ± 0.09	3.19 ± 0.09
D-8	26.72 %	4.15 ± 0.37	6.86 ± 0.49	5.87 ± 0.48	5.62 ± 0.33	5.30 ± 0.28	2.92 ± 0.11
D-7	27.28 %	4.45 ± 0.23	7.24 ± 0.29	6.32 ± 0.26	5.98 ± 0.18	5.57 ± 0.13	3.01 ± 0.10
D-9	29.67 %	4.84 ± 0.49	7.79 ± 0.70	6.80 ± 0.77	6.30 ± 0.51	5.83 ± 0.43	3.45 ± 0.38

Tabla 3.4.3 Eficiencias medias obtenidas para las muestras, agrupadas por grupos de igual composición.

En la figura 3.4.1 se representa la eficiencia relativa media de las muestras medidas frente a la energía para las distintas concentraciones de óxido de plomo. Las eficiencias están normalizadas al valor medio obtenido en el grupo de muestras sin PbO. Para facilitar la visualización de las curvas no se incluyeron las barras de error. Se puede observar un efecto extraño en las curvas: los fotones con energía de 96.7 keV se ven más afectados por la autoabsorción que los de 66.1 keV, al contrario de lo que cabría esperar. Para el resto de energías el comportamiento es normal: a medida que crece ésta los efectos de la autoabsorción son más pequeños. Más adelante se tratará este tema.

Las densidades de las muestras preparadas no guardan una relación directa con la proporción de PbO de las mismas, como se comentó con anterioridad. Con objeto de estudiar el efecto separado de densidad y composición se reagruparon las muestras atendiendo a la densidad aparente de las mismas. Se calcularon las eficiencias medias de cada uno de los grupos, que se presentan en la tabla 3.4.4.

Las eficiencias medias para cada grupo de densidades si muestran ahora el carácter decreciente, más acentuado a medida que la energía es más pequeña. El caso de las energías 66.1 y 96.7 keV sigue igual que antes, y será comentado con más detalle a continuación. En la figura 3.4.2 se representan las eficiencias medias de cada uno de los grupos de muestras de igual densidad.

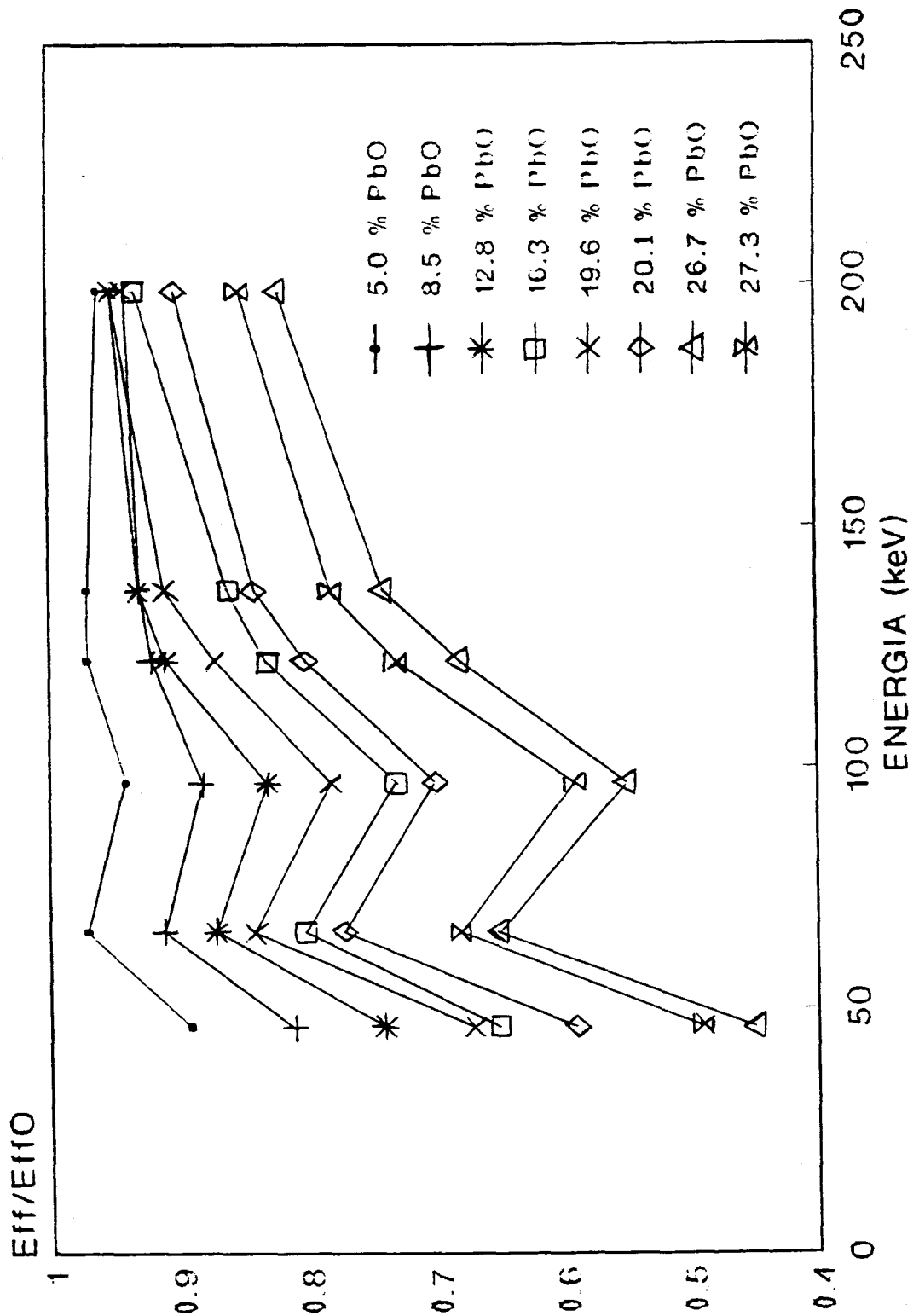


Figura 3.4.1 Eficiencias normalizadas de las distintas muestras, agrupadas en grupos de igual composición.

ENERGIA (keV)

DENS. g/cm ³	46.5	66.1	96.7	121.1	136.6	198.6
1.02	9.31 ±0.19	10.88 ±0.23	10.87 ±0.25	8.38 ±0.13	7.28 ±0.09	3.69 ±0.11
1.10	9.05 ±0.30	10.50 ±0.24	10.53 ±0.29	8.14 ±0.15	7.08 ±0.11	3.50 ±0.07
1.19	7.55 ±0.67	9.85 ±0.67	9.45 ±0.66	7.74 ±0.45	6.77 ±0.35	3.40 ±0.18
1.30	5.55 ±0.64	8.30 ±0.56	7.52 ±0.68	6.68 ±0.41	6.07 ±0.31	3.30 ±0.23
1.40	4.45 ±0.20	7.25 ±0.25	6.32 ±0.23	5.96 ±0.16	5.57 ±0.11	3.01 ±0.10
1.52	3.83 ±0.11	6.41 ±0.04	5.45 ±0.06	5.33 ±0.10	5.05 ±0.03	2.85 ±0.10

Tabla 3.4.4 Eficiencias de las muestras de Al₂O₃ + PbO agrupadas por grupos de igual densidad.

Las incertidumbres que acompañan a las eficiencias corresponden a una desviación estándar. Los grupos de densidades 1.2 y 1.3 gcm⁻³ tienen mayores incertidumbres que los restantes, debido a la inclusión de un mayor número de muestras con composiciones diferentes.

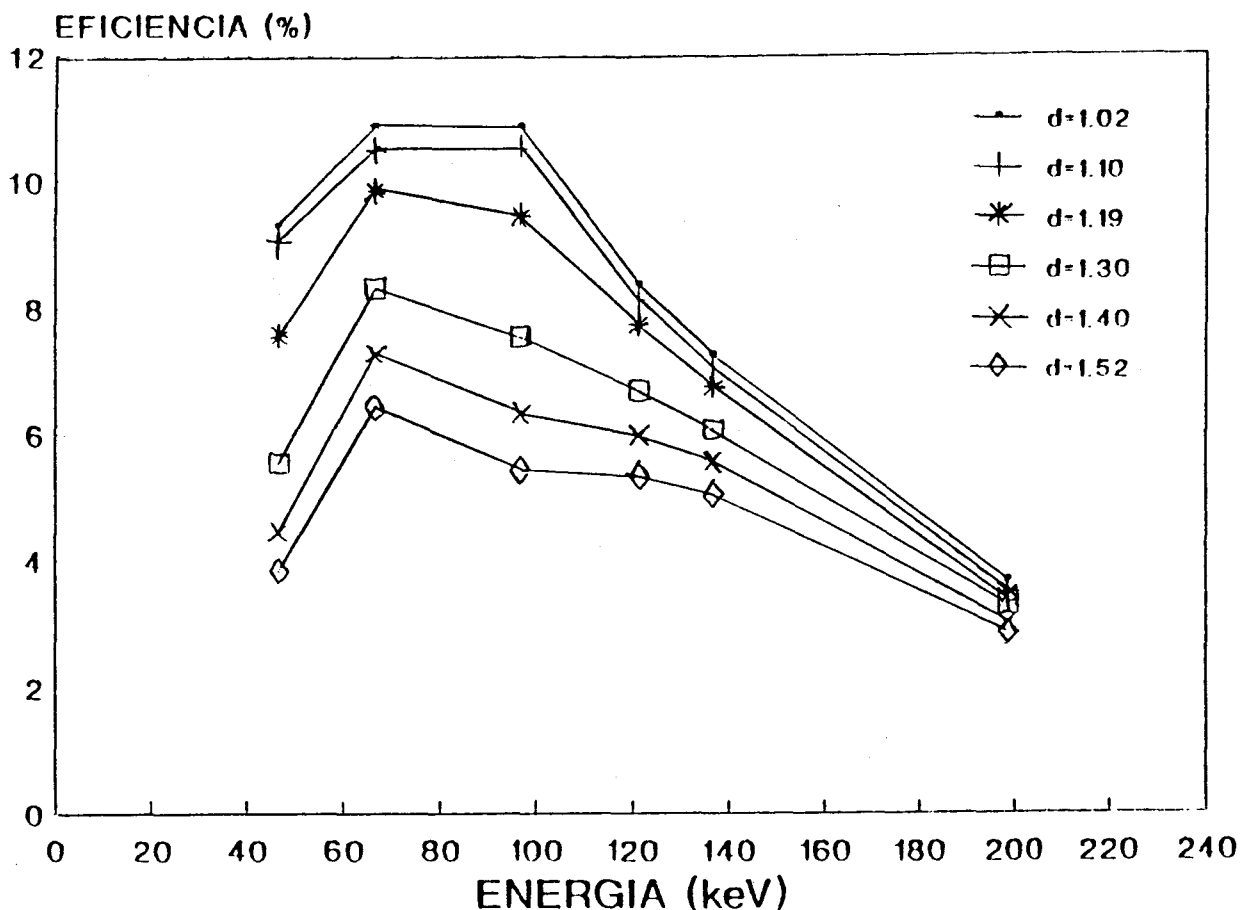


Figura 3.4.2 Eficiencias de las muestras de $\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{PbO}$ agrupadas según la densidad.

El problema indicado anteriormente del mayor efecto de la autoabsorción para los fotones de 96.7 que para los de 66.1 keV fue estudiado detenidamente. En los espectros colectados de las muestras con PbO se observa la presencia de rayos X correspondientes al plomo (véase la figura 3.4.3 donde se representa uno de estos espectros); en concreto, las energías observadas son:

- $K_{\alpha 2}$: 72.805 keV
- $K_{\alpha 1}$: 74.969 keV
- $K_{\beta 1}$: 84.784 keV
- $K_{\beta 2}$: 87.306 keV

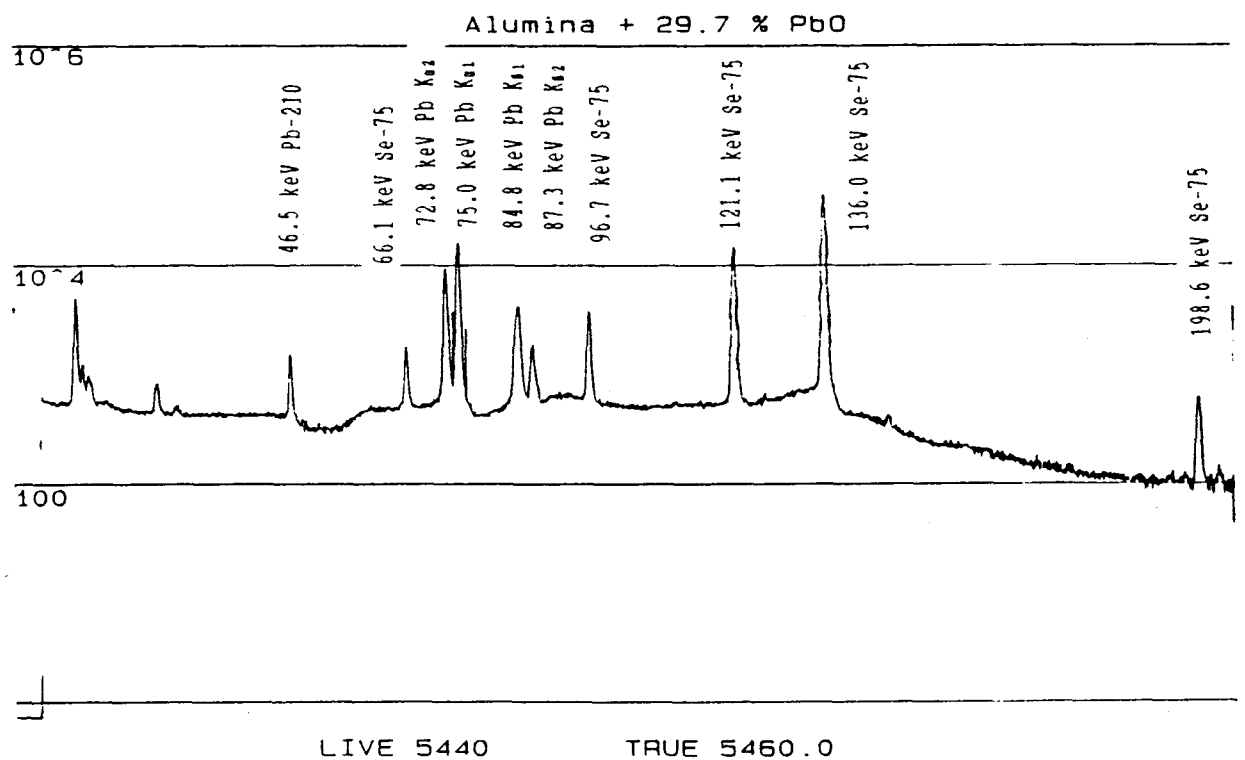
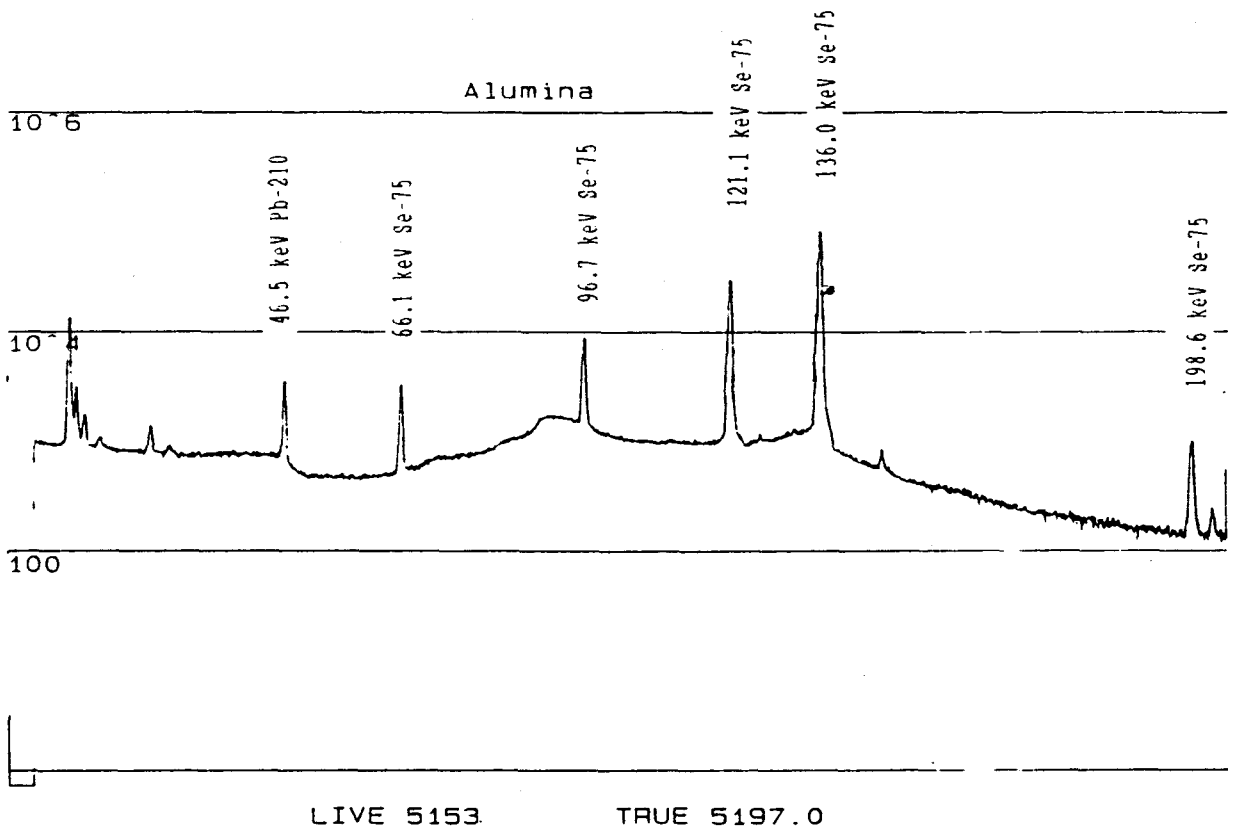


Figura 3.4.3 Espectro de una muestra de Al_2O_3 pura y otra con PbO , marcadas ambas con ^{210}Pb y ^{75}Se .

Los rayos X son producidos por la excitación de los electrones atómicos del plomo, en este caso los de la capa K, por la radiación emitida por la muestra. La energía de estos rayos X está comprendida entre las de los fotones 'problemáticos'. La sección eficaz por efecto fotoeléctrico muestra incrementos bruscos para las energías correspondientes a los distintos orbitales atómicos (llamados bordes K o L según sea la procedencia de los rayos X), como se puede apreciar en la figura 3.4.4 en la que se ha representado la sección eficaz total de interacción de fotones con plomo, aluminio y oxígeno. Los valores de referencia de esta figura se tomaron de las tablas de Storm e Israel <STORM-67>. Las discontinuidades de la sección eficaz de la figura corresponden a la excitación de los electrones de la capa L (13.035, 15.200 y 15.861 keV) y los de la capa K (sólo aparece el valor 88.004 keV). Se puede apreciar que para el plomo la sección eficaz de interacción de fotones es mayor para 100 keV que para 60. Debido a su menor número atómico, los bordes K correspondientes al aluminio y al oxígeno están situados en energías inferiores a 10 keV, por lo que no están representados en la figura.

Una explicación posible de la mayor atenuación de los fotones de 96.7 keV pudiera ser el mayor valor del coeficiente de atenuación para esta energía que para 66.1 keV en las diferentes muestras. Con objeto de comprobar esta hipótesis se calcularon los coeficientes de atenuación másicos de las diferentes muestras preparadas. Para este cálculo se utilizaron los valores tabulados por Hubbell <HUBBELL-82> y se aplicó la fórmula:

$$\Omega = \Sigma w_i \cdot \Omega_i \quad [3.13]$$

donde Ω es el coeficiente de atenuación másico del compuesto, Ω_i se refiere al del elemento i y w_i es la proporción en peso del elemento i . En la tabla 3.4.5 se presentan los resultados de dichos cálculos; para una mayor claridad se han representado

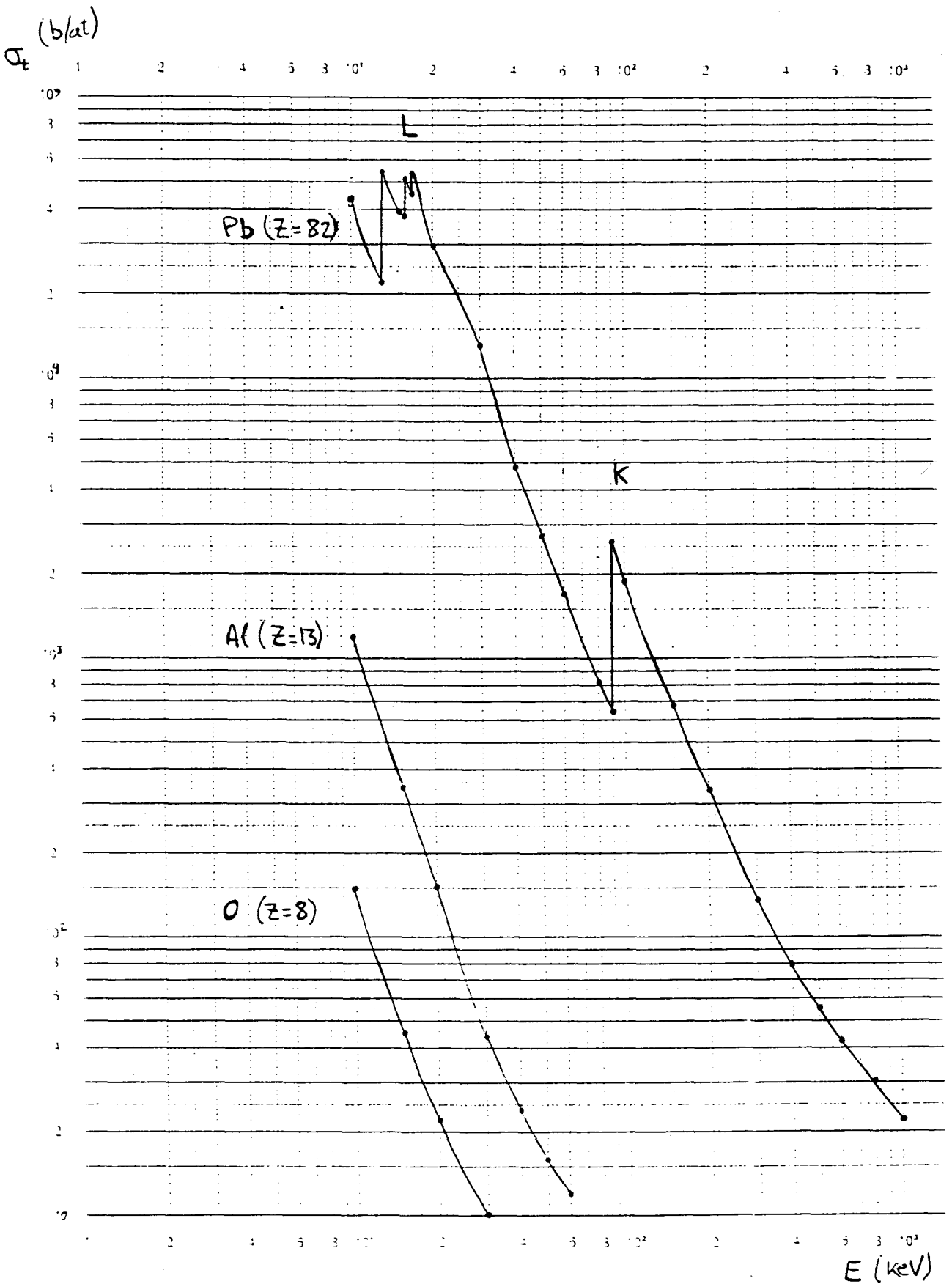


Figura 3.4.4 Secciones eficaces de interacción de fotones para oxígeno ($Z=8$), aluminio ($Z=13$) y plomo ($Z=82$).

gráficamente en la figura 3.4.5 estos mismos valores para algunas de las proporciones de PbO del conjunto de muestras preparado.

PbO (%)	ENERGIA (keV)							
	30	40	50	60	80	100	150	200
0.	0.0766	0.0419	0.0293	0.0236	0.0185	0.0163	0.0137	0.0123
5.02	0.2153	0.1073	0.0657	0.0460	0.0290	0.0416	0.0225	0.0164
8.46	0.3098	0.1519	0.0905	0.0613	0.0362	0.0589	0.0285	0.0192
12.76	0.4249	0.2062	0.1207	0.0800	0.0449	0.0799	0.0358	0.0226
16.31	0.5224	0.2522	0.1462	0.0958	0.0522	0.0976	0.0420	0.0255
19.64	0.6139	0.2954	0.1702	0.1106	0.0592	0.1143	0.0479	0.0282
20.12	0.6287	0.3024	0.1741	0.1130	0.0603	0.1170	0.0488	0.0287
26.72	0.8088	0.3873	0.2213	0.1421	0.0739	0.1499	0.0602	0.0340
27.28	0.8235	0.3943	0.2252	0.1445	0.0750	0.1526	0.0612	0.0344
29.67	0.8885	0.4249	0.2422	0.1550	0.0799	0.1644	0.0653	0.0364

Tabla 3.4.5 Coeficiente de atenuación másico para las distintas mezclas de Al₂O₃ y PbO de las muestras.

Los valores del coeficiente de atenuación másico de las muestras con alúmina pura no presentan discontinuidad alguna, como corresponde al hecho de tener el borde K a energías muy bajas (1.56 keV para el Al). Sin embargo, en cuanto aparece PbO en la composición de la muestra se aprecia claramente el borde K del plomo, incluso para las muestras con un menor contenido de óxido de plomo. No es sorprendente este comportamiento si se considera que la sección eficaz de interacción del plomo es un orden de magnitud superior, al menos, a la correspondiente al aluminio, como se puede verificar en la figura 3.4.4.

A la luz de estas consideraciones se puede efectuar un análisis más detallado de los resultados presentados en la tabla

3.4.4. En los dos primeros grupos de muestras, con densidades 1.02 y 1.10 gcm³ y sin PbO, se observa una disminución parecida de la eficiencia para las energías de 66.1 y 96.7 keV. A medida que la proporción de PbO de las muestras aumenta, se aprecia más claramente la mayor atenuación de los fotones de 96.7 keV.

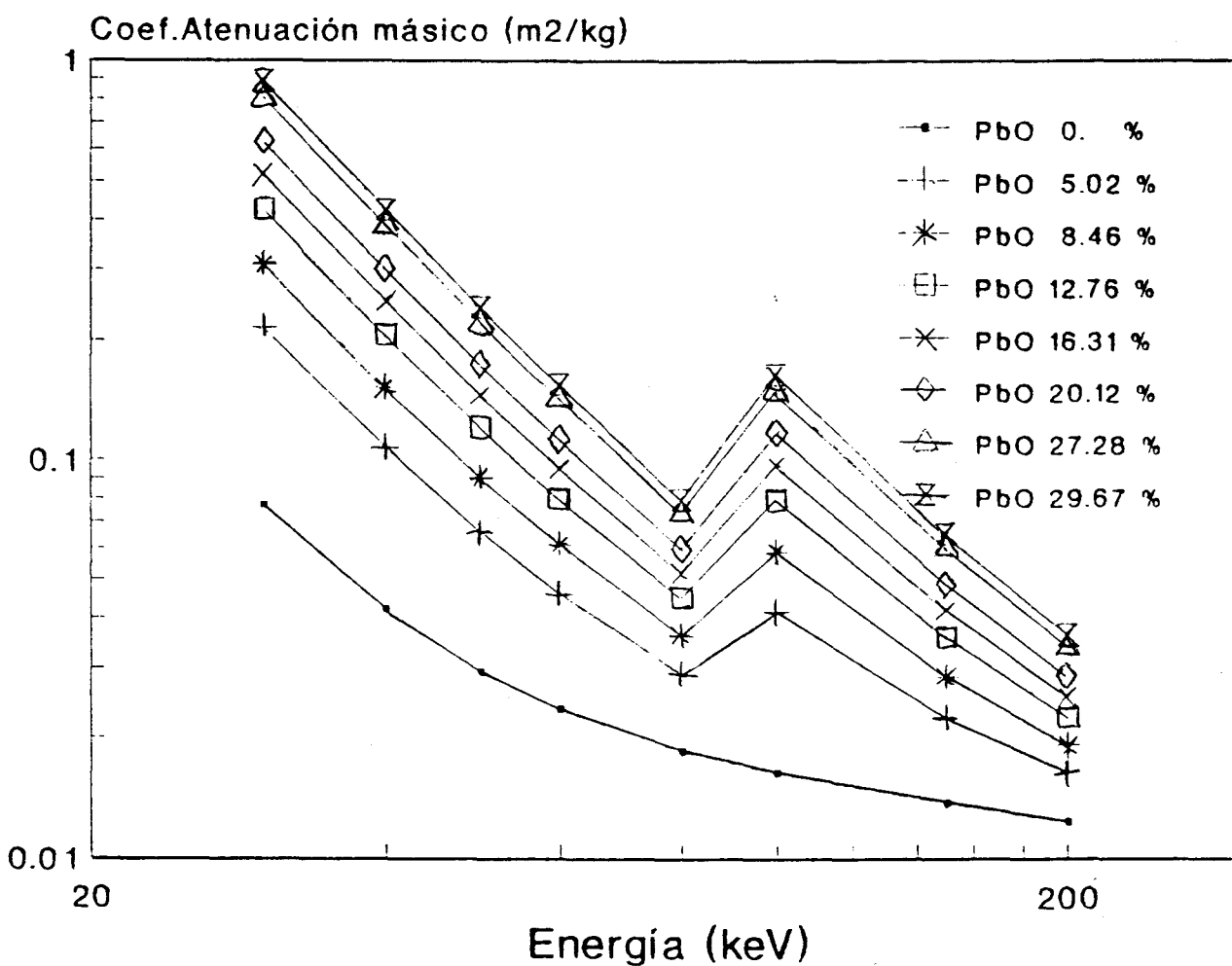


Figura 3.4.5 Coeficientes de atenuación másica de varias de las mezclas de Al₂O₃ y PbO utilizadas.

A modo de conclusión se puede comentar la evidencia experimental de la variación de la eficiencia con la densidad y con la composición de la muestra. Respecto a esta última ya se han comentado los resultados aparentemente contradictorios que se pueden obtener. Los resultados que se han presentado en esta sección no son directamente aplicables a las muestras medidas en el capítulo siguiente, pero ponen de manifiesto la necesidad de un método para corregir la autoabsorción de las mismas y las dificultades en la preparación de muestras de calibración sintéticas.

3.5 VALIDACION DE LAS CALIBRACIONES.

Después de exponer la puesta a punto, calibraciones y correcciones por autoabsorción que se realizan con los dos sistemas detectores que se emplearán en este trabajo es preciso confirmar la bondad de los resultados que se obtengan. La forma más común de cotejar los resultados de los análisis es mediante la participación en ejercicios de intercomparación y por la medida de muestras con actividades bien conocidas.

En los ejercicios de intercomparación se reparten alícuotas de una muestra de actividad desconocida entre los laboratorios participantes. Los organizadores del ejercicio establecen posteriormente, a partir de los resultados de los análisis enviados por los laboratorios participantes, las concentraciones de los radionúclidos requeridos, así como las incertidumbres en las mismas o los intervalos de concentraciones aceptables.

La Unidad Operativa de Control Radiológico Externo del CIEMAT participa asiduamente en las intercomparaciones organizadas por la Agencia Internacional de la Energía Atómica, OIEA. Los ejercicios en los que se ha participado con alguno de los dos detectores empleados en este trabajo se listan a continuación, en la tabla 3.5.1. Hay que señalar que en tan sólo

uno de éstos se requería la determinación de emisores gamma de baja energía; no obstante se indican todos los resultados para acreditar las calibraciones de los detectores en la región de altas energías.

INTERCOMPARACION	NUCLIDO	MEDIDO	RESULTADO IAEA
IAEA-SD-A-1			
<IAEA-88>			
	⁴⁰ K	242. ± 6.	235. ± 16.
	²¹⁰ Pb	57. ± 16.	70. ± 18.
	²²⁶ Ra	68. ± 9.	75. ± 15.
IAEA-321			
<IAEA-90a>			
	⁴⁰ K	544. ± 19.	552. ± 17.
	¹³⁴ Cs	15.1 ± 0.1	15.5 ± 0.7
	¹³⁷ Cs	70.4 ± 2.8	72.6 ± 1.6
IAEA-352			
<IAEA-90b>			
	⁴⁰ K	451. ± 20.	391. ± 15.
	¹³⁷ Cs	3.5 ± 1.1	2.7 ± 0.2
IAEA-156			
<IAEA-91>			
	⁴⁰ K	718. ± 11.	657. ± 20.
	¹³⁴ Cs	130.9 ± 2.5	132. ± 6.
	¹³⁷ Cs	272.2 ± 4.8	264. ± 10.

Tabla 3.5.1 Resultados obtenidos en cuatro ejercicios de intercomparación organizados por la OIEA. Las actividades están medidas en Bq/kg y los errores en las concentraciones corresponden a una desviación estándar.

La primera de las intercomparaciones, IAEA SD-A-1, se realizó sobre una muestra de sedimento marino. La concentración de ⁴⁰K concuerda satisfactoriamente con el valor aceptado. En lo que respecta a ²¹⁰Pb y ²²⁶Ra, las medidas se realizaron con la geometría plancheta LEPS (debido al pequeño tamaño de la muestra,

15 g), y dadas las bajas concentraciones, los resultados obtenidos, aunque satisfactorios, van acompañados de importantes incertidumbres. Adicionalmente, hay que señalar el alto valor de las incertidumbres de las concentraciones de estos dos radionúclidos en el resultado final de la intercomparación, poniendo de manifiesto una dispersión considerable entre los resultados enviados por los participantes.

La muestra del ejercicio IAEA-321 era leche en polvo. Dado que los radionúclidos a determinar son emisores gamma con energías elevadas, la diferencia de la matriz respecto a los sedimentos y tierras que se presentan en esta memoria no es especialmente significativa. Las concentraciones de los tres radionúclidos determinados presentan un buen acuerdo con los valores finales de la intercomparación.

En el ejercicio IAEA-352 la muestra a analizar estaba constituida por tejido de atún liofilizado. Como en el caso anterior, no se ha considerado importante la diferencia en el tipo de muestra. Las concentraciones de ^{137}Cs medida en nuestro laboratorio es perfectamente compatible con el resultado final de este ejercicio. En el caso del ^{40}K el valor dado por nuestro laboratorio se aleja del valor recomendado; en este caso la media de los laboratorios participantes, excluyendo los valores aberrantes, es $410. \pm 110. \text{ Bq/kg}$.

La muestra del ejercicio IAEA-156 era trébol recogido en Austria poco después del accidente de Chernobyl. Las concentraciones de los isótopos de cesio determinados presentan un buen acuerdo con los valores finales de la intercomparación. El valor de ^{40}K es ligeramente superior, un 9%, al valor final recomendado.

En el momento de terminar la edición de esta memoria disponíamos de los resultados provisionales de otros dos ejercicios de intercomparación sobre matrices de sedimentos marinos. Las muestras problemas procedían del atolón de Eniwetak,

islas Marshall, y del atolón de Mururoa, Polinesia francesa respectivamente. En la tabla 3.5.2 se muestran los valores enviados por nuestro laboratorio junto con la media de todos los laboratorios participantes y la mediana. Las concentraciones medidas por nuestro laboratorio son siempre muy próximas a la mediana correspondiente. Es destacable la gran dispersión de los resultados enviados, que hace que hasta la evaluación final del ejercicio no se puedan sacar conclusiones detalladas.

INTERCOMP.	NUCLIDO	MEDIDO	MEDIA PROV.	MEDIANA
IAEA-367				
	⁶⁰ Co	1.33± 0.28	1.4 ± 1.3	0.9
	¹³⁷ Cs	209.0± 0.60	199. ±26.	195.
	²⁴¹ Am	28.1± 0.8	25.6 ± 7.0	25.9
IAEA-368				
	⁶⁰ Co	0.74± 0.41	2.7 ± 7.4	0.77
	¹³⁷ Cs	0.40± 0.25	20.9 ±48.6	0.48
	²¹⁰ Pb	16.9 ± 3.6	24.3 ±12.6	23.4
	²⁴¹ Am	1.36± 0.17	1.4 ± 0.4	1.3

Tabla 3.5.2 Resultados provisionales obtenidos en dos ejercicios de intercomparación organizados por la OIEA. Las actividades están medidas en Bq/kg y los errores en las concentraciones corresponden a una desviación estándar.

Además de la participación en varios ejercicios de intercomparación, se han medido dos muestras estándar, en las que se conocen las concentraciones de algunos radionúclidos. Estas muestras van acompañadas de un certificado con las actividades de las mismas; los certificados de estas muestras se adjuntan en el apéndice A-2. Los resultados obtenidos en la medida de estas dos muestras se presentan en la tabla 3.5.3.

La muestra NBS-4350 B es un sedimento fluvial suministrado por el National Bureau of Standards de EE.UU. Las

actividades medidas coinciden bastante bien con los valores certificados. Los casos menos favorables son el ^{60}Co y ^{241}Am , donde los resultados medidos entran en el valor certificado con las barras de error. Es interesante señalar que la determinación de ^{152}Eu se realizó utilizando tres de sus emisiones fotónicas, estando una de ellas en el intervalo de bajas energías; los resultados obtenidos son satisfactorios en todos los casos. El ^{226}Ra se determinó a partir de su emisión fotónica principal en lugar de a través de sus descendientes; ésto explica el elevado valor de su incertidumbre.

El análisis del material de referencia IAEA SOIL-6 es también satisfactorio. La concentración de ^{137}Cs se encuentra dentro del intervalo de valores admitidos, y es compatible con el valor medio dentro de la incertidumbre experimental. La concentración de ^{226}Ra también es compatible con el valor certificado, aunque, como en el caso de la muestra NBS-4350 B, la incertidumbre de la medida sea elevada.

MUESTRA	NUCLIDO	MEDIDO ($\pm 2\sigma$)	CERTIFICADO
NBS-4350 B			
	^{40}K	559. \pm 24.	560. #
	^{60}Co	5.9 \pm 1.2	4.64 \pm 0.23
	^{137}Cs	30.0 \pm 1.4	29.0 \pm 1.8
	^{152}Eu (344 keV)	30.4 \pm 3.4	30.5 \pm 1.2
		(121 keV)	32.9 \pm 1.9
		(40 keV)	30.9 \pm 4.1
	^{226}Ra (186 keV)	32. \pm 14.	35.8 \pm 3.6
	^{241}Am	0.30 \pm 0.86	0.15 \pm 0.03
IAEA SOIL-6			
	^{137}Cs	51.8 \pm 2.1	53.6 (51.4-57.9)
	^{226}Ra (186 keV)	91. \pm 17.	79.9 (69.6-93.4)

Tabla 3.5.3 Comparación de los resultados medidos y certificados de las muestras NBS-4350 B y IAEA SOIL-6. Las actividades están expresadas en Bq/kg. # valor no certificado.

4. APLICACIONES EXPERIMENTALES.

Después de haber descrito la puesta a punto y calibración de los dos sistemas detectores aptos para la medida de emisores gamma de bajas energías se procederá a detallar dos de las aplicaciones experimentales en los que han sido utilizados.

La primera de estas aplicaciones es la datación de sedimentos marinos. Para ello se necesita determinar las concentraciones de ^{210}Pb , ^{226}Ra y ^{137}Cs en diferentes secciones de un núcleo de sedimentos; estas concentraciones estarán previsiblemente entre 10 y 100 Bq/kg para los dos primeros núclidos y entre 0 y 10 para el último. El detector ReGe es el más apropiado para estas medidas al tener un intervalo energético de aplicación más amplio que el del sistema LEPS <MARTINEZ-91a>.

El segundo conjunto de muestras que se presenta en esta memoria está constituido por tierras procedentes de una antigua fábrica de concentración de minerales de uranio. En este caso interesa la determinación de aquellos radionúclidos de la serie del ^{238}U con mayor relevancia radiológica, como son ^{210}Pb , ^{226}Ra y ^{230}Th , así como el uranio. Para estas muestras se ha empleado el sistema LEPS, al ser las concentraciones en la mayoría de las muestras medidas relativamente elevadas. En aquellas muestras con niveles bajos de concentración de los isótopos de interés se utilizó el detector ReGe, por su mayor sensibilidad.

4.1 DATAACION DE SEDIMENTOS MARINOS MEDIANTE Pb-210 Y Cs-137.

La datación con isótopos radiactivos es una valiosa herramienta para muchos campos de la ciencia, como pueden ser: Geoquímica, Geofísica, Hidrología o Paleontología, al establecer escalas cronológicas para diferentes sucesos y permitir el seguimiento o trazado de numerosos procesos naturales y

artificiales.

Los métodos de datación por radioisótopos se pueden clasificar atendiendo al origen de éstos. Así podemos hacer una lista resumen como sigue:

A. Métodos basados en el decaimiento de radionúclidos naturales primordiales:

$^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$	$T_{1/2} = 1.227 \cdot 10^9 \text{ a}$
$^{87}\text{Rb}/^{87}\text{Sr}$	$T_{1/2} = 4.80 \cdot 10^{10} \text{ a}$
$^{176}\text{Lu}/^{176}\text{Hf}$	$T_{1/2} = 3.60 \cdot 10^{10} \text{ a}$
$^{187}\text{Re}/^{187}\text{Os}$	$T_{1/2} = 5.0 \cdot 10^{10} \text{ a}$

B. Métodos basados en radionúclidos producidos por la radiación cósmica:

^{14}C	$T_{1/2} = 5.730 \cdot 10^3 \text{ a}$
^{26}Al	$T_{1/2} = 7.2 \cdot 10^5 \text{ a}$
^{32}Si	$T_{1/2} = 1.05 \cdot 10^2 \text{ a}$
^{39}Ar	$T_{1/2} = 2.69 \cdot 10^2 \text{ a}$

C. Métodos de desequilibrio en cadenas radiactivas naturales:

$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$T_{1/2} = 4.468 \cdot 10^9 \text{ a}$
	$T_{1/2} = 2.45 \cdot 10^5 \text{ a}$
$^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$	$T_{1/2} = 7.538 \cdot 10^4 \text{ a}$
$^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$	$T_{1/2} = 7.038 \cdot 10^8 \text{ a}$
	$T_{1/2} = 3.276 \cdot 10^4 \text{ a}$
$^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$	$T_{1/2} = 1.405 \cdot 10^{10} \text{ a}$
	$T_{1/2} = 1.9131 \text{ a}$
^{210}Pb	$T_{1/2} = 2.23 \cdot 10 \text{ a}$

D. Métodos basados en radionúclidos artificiales.

^{137}Cs	$T_{1/2} = 3.017 \cdot 10 \text{ a}$
-------------------	--------------------------------------

^{90}Sr	$T_{1/2} = 2.86 \cdot 10$	a
$^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$	$T_{1/2} = 2.412 \cdot 10^4$	a
	$T_{1/2} = 6.570 \cdot 10^3$	a

Los intervalos de tiempo sobre los que son aplicables los diferentes métodos dependen fundamentalmente de los periodos de semidesintegración involucrados, a excepción del cuarto grupo, cuya presencia en la Tierra se remonta sólo a unas pocas decenas de años. A la vista de dichos periodos se observa que la mayoría de estos métodos son aplicables para el cálculo de edades geológicas; los periodos más cortos que aparecen son del orden de 100 años.

En los últimos años se ha producido un gran interés por el estudio del impacto ambiental de la actividad humana (contaminación por elementos y sustancias tóxicas y radiactivas, alteraciones en la flora y fauna de los ecosistemas, etc.). Los sedimentos formados en sistemas acuáticos son interesantes fuentes de información a este respecto, al acumular en sus estratos los vestigios o pruebas de la modificación del medio natural por parte del hombre. Para un estudio completo de estos sistemas es necesario disponer de técnicas de datación que hagan posible relacionar las variaciones de los parámetros estudiados en el tiempo.

4.1.1 Método de datación por Cs-137.

El ^{137}Cs es un radionúclido artificial con periodo de semidesintegración de 30.17 años. Es producido en proporciones mayores del 6% en las fisiones de ^{235}U y ^{239}Pu , y constituye uno de los contaminantes radiactivos de mayor impacto radiológico. Como consecuencia de los ensayos de armas nucleares, comienza a ser detectada su presencia en la atmósfera en 1954, aumentando su concentración hasta alcanzar los valores máximos en los años 1963 y 64, justo después de la realización del mayor número de pruebas nucleares atmosféricas. Desde entonces, gracias a la moratoria

sobre este tipo de ensayos nucleares de EE.UU., Gran Bretaña y U.R.S.S., la concentración de ^{137}Cs en la atmósfera va disminuyendo, salvo pequeños incrementos debidos a pruebas esporádicas chinas y francesas y al accidente de la central nuclear de Chernobyl.

Al precipitar el ^{137}Cs atmosférico, una parte de éste se va acumulando en las capas de los sedimentos. El perfil de concentraciones de este radionúclido en el sedimento puede ser utilizado para establecer una tasa media de sedimentación durante los últimos 40 años, al conocerse el momento en el que aparece a escala mundial en la atmósfera y el de su máxima concentración.

El ^{137}Cs es un emisor β^- , cuyo esquema de desintegración se muestra en la figura 4.1.1. El método más empleado para su determinación es la medida del fotón gamma de 661.6 keV emitido por su descendiente inmediato, $^{137\text{m}}\text{Ba}$, con una intensidad absoluta del 85.6 %. Esta medida se suele realizar con detectores semiconductores de germanio. También es posible la separación radioquímica del cesio y la medida posterior de la actividad beta.

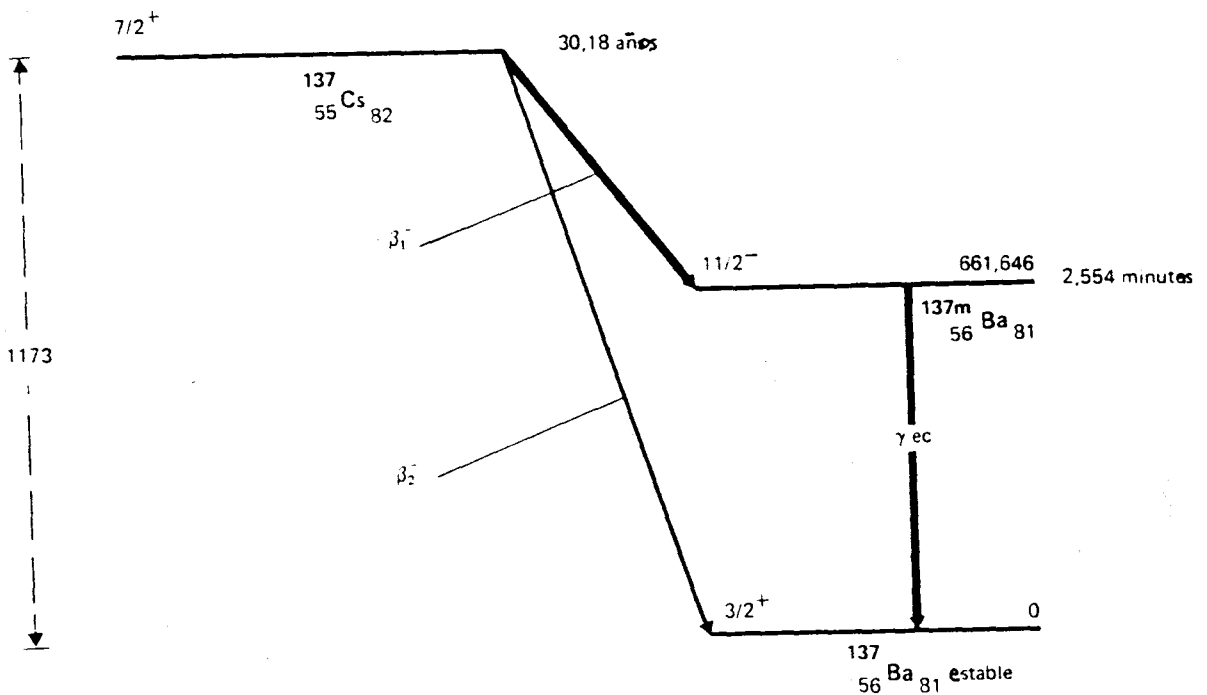


Figura 4.1.1 Esquema de desintegración del ^{137}Cs .

4.1.2 Método de datación por Pb-210.

El ^{210}Pb es un radionúclido natural, con 22.3 años de periodo de semidesintegración, perteneciente a la serie del ^{238}U . Debido a la particularidad de su ciclo en la naturaleza, a principios de los 60 se contempla la posibilidad de utilizarlo para la datación de eventos sucedidos en los últimos 150 años <GOLDBERG-63>, y aparecen las primeras aplicaciones para la datación de capas de hielos antárticos y glaciales <CROZAZ-64,-67>.

A la vista del diagrama de la serie radiactiva del uranio, figura 4.1.2, se observa que el descendiente inmediato del ^{226}Ra es el ^{222}Rn , gas noble. Una parte importante del radón producido en las áreas continentales (aproximadamente un 25%, <EL-DAOUSHY-88>) emana a la atmósfera, quedando el resto atrapado en los suelos, siguiendo en equilibrio con su predecesor, ^{226}Ra . Por el contrario, en el ^{222}Rn emanado se rompe el equilibrio secular del sistema, decayendo con su propio periodo de semidesintegración, 3.8 días, dando lugar a sus descendientes. Entre éstos, el primero que tiene un periodo de semidesintegración apreciable es el ^{210}Pb .

La fuente principal de ^{210}Pb en la atmósfera es la emanación de radón de las masas continentales. Otros procesos como la emanación de ^{222}Rn de los océanos o la resuspensión de ^{226}Ra del suelo, no contribuyen en más del 3% al inventario de ^{210}Pb atmosférico <EL-DAOUSHY-88>. El tiempo de residencia del ^{210}Pb en la atmósfera, del orden de una semana, permite un transporte a gran escala del mismo a través de las capas bajas de la atmósfera antes de su precipitación. A pesar de observarse diferencias regionales en la cantidad de ^{210}Pb precipitada, las variaciones temporales dentro de una misma región son pequeñas, lo que permite la utilización del ^{210}Pb atmosférico para la datación de sedimentos e hielos recientes.

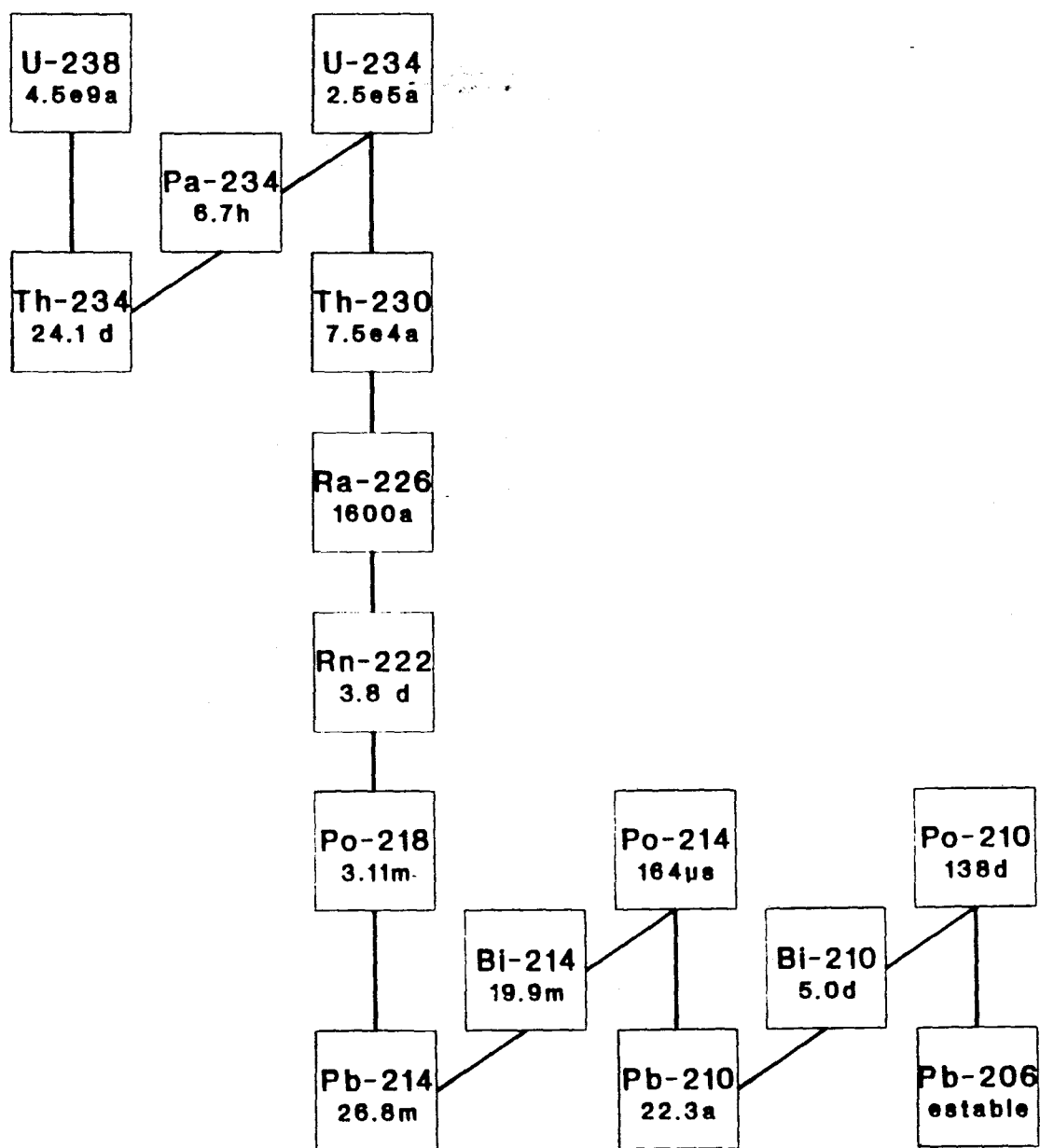


Figura 4.1.2 Diagrama de la serie radiactiva del ^{238}U .

En efecto, al precipitar el ^{210}Pb de origen atmosférico, éste se encuentra aislado del resto de la cadena radiactiva, decayendo con su propio periodo de semidesintegración. Adicionalmente, en los sistemas donde se acumule el ^{210}Pb precipitado (sedimentos, hielos, turberas, etc.) también existirá una fracción del mismo radionúclido cuyo origen es el decaimiento del ^{226}Ra presente en el material; este ^{210}Pb estará en equilibrio secular con el ^{226}Ra y decaerá con la semivida de éste. A esta fracción se la conoce como ^{210}Pb en equilibrio mientras que a la fracción precipitacional se la conoce por ^{210}Pb en exceso.

A partir de la concentración de ^{210}Pb en exceso en un perfil de sedimentos se podrá conocer la tasa de sedimentación y datar sus diferentes capas, al ir decreciendo la actividad del mismo, en ausencia de factores extraños, con la profundidad, debido a la anterior fecha de precipitación, y por tanto, al decaimiento radiactivo. Para realizar la datación con ^{210}Pb es preciso conocer las dos fracciones de ^{210}Pb en la muestras estudiadas.

La concentración de ^{210}Pb en equilibrio se puede conocer, en circunstancias favorables, de la concentración total de ^{210}Pb . Al decaer el ^{210}Pb en exceso con el periodo de semidesintegración propio del ^{210}Pb , a una determinada profundidad la fracción precipitacional habrá decaído por completo, estando todo el ^{210}Pb en equilibrio con el ^{226}Ra . A partir de esta zona la concentración de ^{210}Pb será prácticamente constante. Sin embargo, es posible que la concentración de ^{226}Ra haya variado de unas capas a otras del sedimento, con lo que el valor constante de ^{210}Pb de las últimas capas no corresponderá a la concentración de ^{210}Pb en equilibrio en todas las capas del sedimento estudiado. Es por ello conveniente realizar una determinación independiente del contenido de ^{226}Ra en algunas capas del sedimento.

La determinación del contenido de ^{226}Ra en las diferentes capas del sedimento se puede realizar por separación

radioquímica del radio y posterior medida alfa <SUAREZ-87>, por el método de emanación de radón <EL-DAOUSHY-78> o bien por espectrometría gamma de los descendientes del radón ^{214}Bi ($E = 609.1 \text{ keV}$, $I = 46.1 \%$) y ^{214}Pb ($E = 351.9 \text{ keV}$, $I = 37.1 \%$) <POWERS-78>.

El ^{210}Pb es un emisor β que presenta un espectro de electrones de baja energía ($E_{\text{max}} = 17 \text{ keV}$, $I = 80.2 \%$; $E_{\text{max}} = 63 \text{ keV}$, $I = 17 \%$). Adicionalmente emite un fotón de 46.5 keV con una intensidad del 4.05% . La determinación de ^{210}Pb se puede efectuar de varias maneras:

- Medida de la actividad beta del ^{210}Pb con un detector de centelleo líquido <PACER-83>.

- Medida de la actividad de su descendiente inmediato, ^{210}Bi , también emisor beta pero más energético, por lo que se puede utilizar un contador proporcional de gas <MATSUMOTO-77>.

- Medida del ^{210}Po , emisor alfa descendiente del anterior <EAKINS-76>. Dado el relativamente alto periodo de semidesintegración del ^{210}Po , 138 días, hay que asegurar la existencia de equilibrio secular entre éste y el ^{210}Pb en los estratos más recientes.

- Determinación del ^{210}Pb por espectrometría gamma <GAGGELER-76>, <MARTINEZ-88b>.

El empleo de detectores de germanio tipo n para la medida de un perfil de sedimentos permitirá obtener en una única medida de cada sección las actividades de ^{210}Pb y ^{226}Ra , así como la de ^{137}Cs y otros radionúclidos artificiales que estén presentes. Con ello se evita la realización de métodos radioquímicos para la determinación de estos isótopos, con el consiguiente ahorro de tiempo. El factor más desfavorable de la medida gamma es su menor sensibilidad de detección de ^{210}Pb

(recordemos que la intensidad de emisión fotónica de este radionúclido es tan solo del 4%).

4.1.3 Modelos matemáticos para la datación con Pb-210.

La datación de un núcleo de sedimentos una vez que se conoce el perfil de concentraciones de ^{210}Pb en exceso no es una tarea inmediata. En efecto, debido al gran número de factores que pueden afectar el proceso de formación y posterior evolución del sedimento no existe una técnica común para la obtención de las edades de las diversas capas. Para proceder al fechado de un sedimento es preciso realizar un número de hipótesis sobre el mismo que permitan la utilización de un conjunto de ecuaciones de cuyas soluciones se obtendrán las edades de las diferentes capas así como la tasa y velocidad de sedimentación. Este proceso es lo que se conoce como aplicación de un modelo físico matemático.

La principal característica distintiva de los sedimentos para la aplicación de modelos de datación es su carácter cerrado o abierto. Se considera un sedimento como un sistema cerrado siempre que, después de la formación de cada capa, no se den procesos que la alteren, en especial, las concentraciones de ^{210}Pb , ^{226}Ra y los demás radionúclidos que se empleen para la datación. Entre los agentes que pueden afectar el carácter cerrado de un sedimento podemos citar la mezcla de sedimentos por acción de seres vivos o por fenómenos físicos (drenajes o tormentas, por ejemplo), la disolución parcial de los radionúclidos en la interfase agua sedimento y la movilización de éstos, bien sea vertical u horizontal. La acción de estos agentes dificulta la aplicación de modelos de datación, cuando no la impide.

Entre los modelos que parten de la hipótesis de que el sedimento es un sistema cerrado comentaremos brevemente aquellos de más amplia utilización:

- **Modelo C.I.C.** (Constant Initial Concentration), modelo de valor constante de la concentración inicial de ^{210}Pb en exceso.

- **Modelo C.F.:C.S.** (Constant Flux, Constant Suply), modelo de flujo de ^{210}Pb en exceso y velocidad de sedimentación constante.

- **Modelo C.R.S.** (Constant Rate of Suply), modelo de flujo de ^{210}Pb en exceso constante.

Antes de describir los modelos mencionados es conveniente la definición de algunas magnitudes que se utilizarán:

- La **velocidad de sedimentación** es el espesor de sedimento, z , depositado por unidad de tiempo; generalmente se mide en cm/a , y se representa por la letra w . Para considerar los efectos de compactación de los sedimentos con la profundidad es común expresar la velocidad de sedimentación como cantidad de materia, m , depositada por unidad de tiempo y área; la unidad de medida sería $\text{g/cm}^2\text{a}$ y se representaría por r .

$$w = z / t \qquad r = m / t \qquad [4.1]$$

- El **flujo de ^{210}Pb en exceso** es la actividad de esta fracción que se deposita por unidad de tiempo y área; se mide en $\text{mBq/cm}^2\text{a}$ y se representará por la letra griega ϕ .

4.1.3.1 Modelo C.I.C.

La hipótesis de partida del modelo C.I.C. es la constancia de la concentración inicial de ^{210}Pb en exceso en cada

capa del sedimento. Si llamamos $C(0)$ a esta concentración, a partir del valor actual medido de ésta en cada capa i del sedimento, C_i podemos calcular fácilmente la edad de la misma:

$$C_i = C(0) \cdot e^{-\lambda \cdot t_i} \quad [4.2]$$

donde λ es la constante de desintegración del ^{210}Pb , $\lambda = \ln 2 / 22.3$ a^{-1} . Despejando de la ecuación [4.2] obtenemos:

$$t_i = \frac{1}{\lambda} \cdot \ln \frac{C(0)}{C_i} \quad [4.3]$$

El valor de la concentración inicial de ^{210}Pb en exceso, $C(0)$, se puede tomar directamente de la concentración de la primera capa del sedimento, si no ha habido pérdida de esta fracción en la interfase agua sedimento. En caso contrario, la concentración inicial se puede estimar a partir de los valores en las capas más próximas a la superficie o a partir de los datos de otras técnicas de datación, como el ^{137}Cs .

A la vista de las ecuaciones anteriores es inmediato concluir que la aplicación del modelo C.I.C. a un sedimento exige que el perfil de la concentración de ^{210}Pb en exceso sea monótonamente decreciente. Si no fuese éste el caso, se presentarían situaciones de capas más profundas del sedimento que son más jóvenes que otras situadas más arriba.

4.1.3.2 Modelo C.F.:C.S.

El modelo C.F.:C.S. se puede considerar como un caso particular del modelo C.I.C.. En este modelo se supone que tanto el flujo de ^{210}Pb en exceso como la velocidad de sedimentación son constantes. De estas dos hipótesis se concluye que la concentración inicial de ^{210}Pb en exceso en cada capa es también constante.

El perfil de concentraciones de ^{210}Pb en exceso frente a la profundidad (o al espesor másico depositado, si es necesario realizar correcciones por compactación) ha de ser, además de decreciente, lineal al representar el logaritmo neperiano de la concentración frente a la profundidad o al espesor másico acumulado.

La variación de las concentraciones de ^{210}Pb en exceso para las diferentes capas del sedimento seguirán las ecuaciones:

$$C_i = C(0) \cdot e^{-\lambda \frac{z_i}{w}} \quad [4.4]$$

$$C_i = C(0) \cdot e^{-\lambda \frac{m_i}{r}} \quad [4.5]$$

según se realicen o no correcciones por compactación. Ajustando las concentraciones medidas de ^{210}Pb en exceso frente a profundidad o a espesor másico a las ecuaciones [4.4] o [4.5] se obtendrán los valores de la concentración inicial, $C(0)$, y la velocidad de sedimentación, w o r según sea el caso. La edad de cada capa se puede determinar entonces aplicando las ecuaciones [4.1] o bien la del modelo C.I.C., [4.3].

4.1.3.3 Modelo C.R.S.

El modelo de tasa de aporte de ^{210}Pb en exceso constante, C.R.S., parte de la suposición que el flujo de esta fracción a los sedimentos es constante durante la formación de éstos, sin poner restricciones a la velocidad de sedimentación.

Debido a sus hipótesis menos fuertes, la forma del perfil de concentraciones de ^{210}Pb en exceso no tiene por qué ser monótonamente decreciente. En efecto, al mantenerse constante la razón de aporte de esta fracción al sedimento, una disminución en la velocidad de sedimentación se verá reflejada en un aumento en la concentración de ^{210}Pb en exceso y viceversa.

El valor de la concentración por unidad de superficie de ^{210}Pb en exceso desde la superficie hasta el espesor másico m (que corresponderá a una profundidad z), que llamaremos $A(m)$, será la integral del flujo de éste sobre el tiempo transcurrido desde la formación de la capa en cuestión hasta el momento de muestreo. Expresado matemáticamente:

$$A(m) = \int_0^m C(m) \cdot dm = \int_0^t \phi \cdot e^{-\lambda \cdot t} \cdot dt \quad [4.6]$$

El valor de $A(m)$ se calcula de las concentraciones de ^{210}Pb en exceso del sedimento como sigue:

$$A(m_i) = \sum_0^n C_i \cdot \delta_i \cdot e_i \quad [4.7]$$

donde C_i , δ_i y e_i son la concentración por unidad de masa, la densidad y el espesor de la capa i respectivamente, y n es el número de capas situadas por encima de la que queremos datar.

Considerando la totalidad del sedimento, la aplicación de la ecuación [4.6] conduce a:

$$A(\infty) = \int_0^\infty C(m) \cdot dm = \int_0^\infty \phi \cdot e^{-\lambda \cdot t} \cdot dt = \frac{\phi}{\lambda} \quad [4.8]$$

Integrando [4.6] para una determinada capa se obtiene:

$$A(m) = \frac{\phi}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t}) \quad [4.9]$$

Sustituyendo el valor de $A(\infty)$ de la ecuación [4.8] y despejando el tiempo obtenemos finalmente:

$$t = \frac{1}{\lambda} \cdot \ln \frac{A(\infty)}{A(\infty) - A(m)} \quad [4.10]$$

A la vista de la ecuación [4.7], para calcular los diferentes $A(m)$ es necesario conocer la concentración de ^{210}Pb en todas las capas del sedimento, así como sus densidades.

4.1.4 Muestras medidas.

Los sedimentos estudiados en esta sección fueron recogidos al amparo del proyecto de investigación "Comportamiento del plutonio y americio en el medio ambiente marino" financiado por la Comisión de las Comunidades Europeas y en el que participaron el Instituto Español de Oceanografía y el Instituto PRYMA. Los objetivos principales de dicho proyecto eran la determinación de la distribución de transuránidos en los sedimentos de plataformas continentales y el estudio de los procesos que controlan la transferencia de éstos desde la columna de agua a los sedimentos <ROMERO-86b>.

Para este estudio se eligió la zona litoral almeriense, en el sureste español, donde en 1966 se produjo una liberación accidental de transuránidos al medio ambiente. Sobre el término municipal de Palomares, Almería, cayeron cuatro bombas termonucleares, en dos de las cuales se produjo la ignición del explosivo químico con la consiguiente salida al medio ambiente de parte del plutonio contenido en los artefactos. Por acción del viento la actividad liberada quedó dispersada en una zona de 226 Ha de superficie. El área contaminada comprendía monte bajo, campos de cultivo y zonas urbanas del municipio de Palomares, así como una parte del cauce, normalmente seco, del río Almanzora <IRANZO-85>.

La región estudiada corresponde al golfo de Vera, en el litoral norte almeriense. En la figura 4.1.3 se muestra un mapa de la zona, con las líneas batimétricas, indicándose los puntos donde se recogieron los sedimentos que se presentan a continuación.

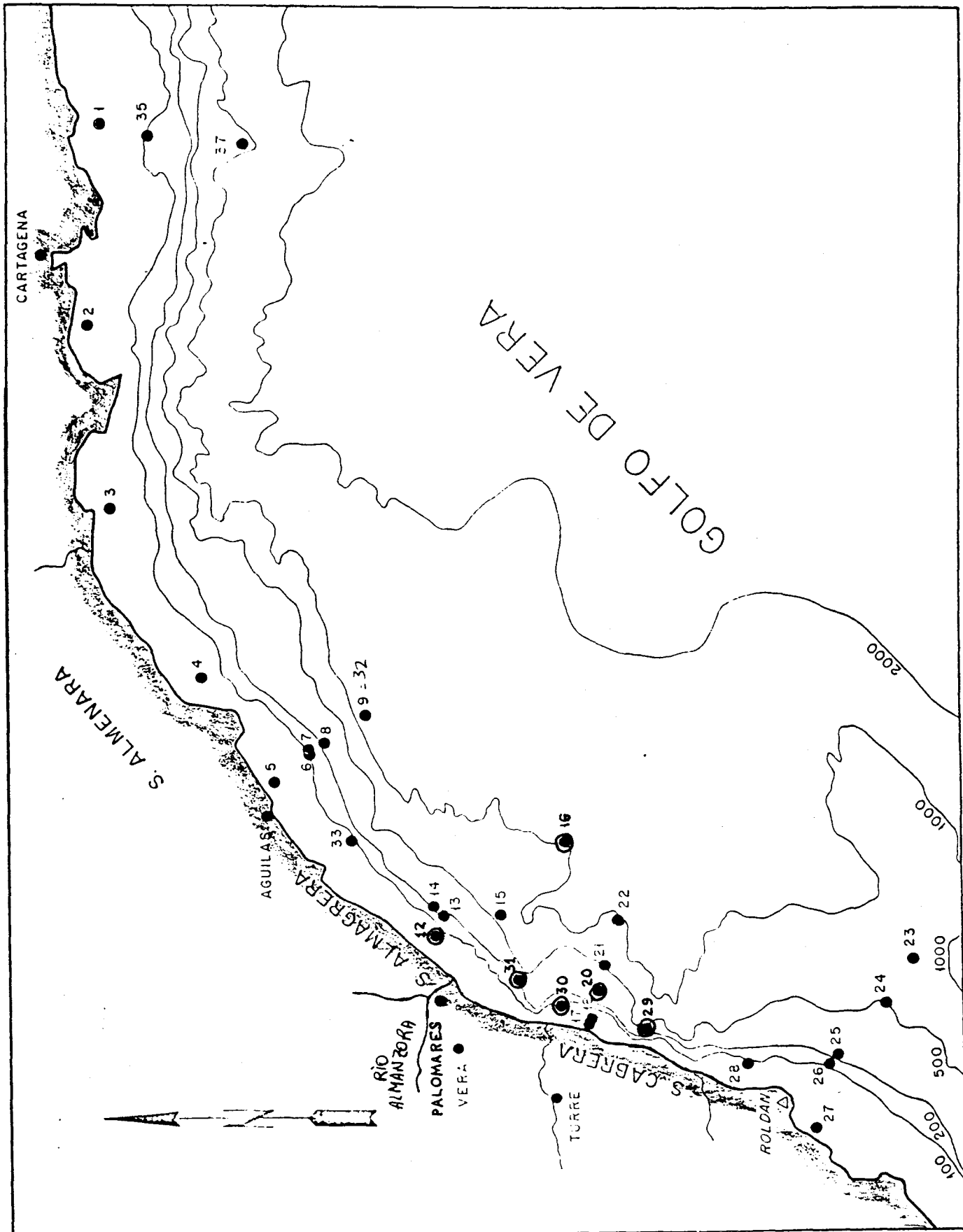


Figura 4.1.3 Plano de la costa almeriense con la localización de los puntos de muestreo.

4.1.4.1 Muestreo.

La toma de muestras de sedimentos constituye un proceso delicado en el que se deben tomar precauciones con vistas a no producir alteraciones en los mismos que desvirtúen los análisis y resultados posteriores.

Los núcleos de sedimento fueron recogidos en el mes de octubre de 1985 con una draga tipo box-corer operada desde el barco Cornide de Saavedra, del IEO. El diseño de la draga es de Jennings y Papucci <JENNINGS-85>, y permite tomar un núcleo de sedimento de 18 cm de diámetro y 40 cm de longitud.

Los núcleos de sedimento extraídos del fondo marino se seccionaron a bordo en capas de 1 cm de espesor. De estas capas se desecha el centímetro exterior, en el que se han podido producir mezclas por arrastre en el momento de tomar el sedimento. Las muestras correspondientes a cada sección se secan a 105 °C y se dividen para los diversos análisis.

Los análisis por espectrometría gamma se realizaron con muestras de 45 g de peso seco, previamente molidas y tamizadas. La geometría de medida elegida fue la placa Petri. Una vez que estuvieron preparadas las muestras se sellaron los recipientes con cinta adhesiva y se esperó cuatro semanas antes de comenzar las medidas para asegurar el equilibrio secular del ^{226}Ra y sus descendientes.

Se han analizado un total de seis núcleos de sedimentos; de éstos, tan sólo se discutirán en detalle dos. De los análisis realizados en los cuatro restantes se presentarán los resultados globales en la sección 4.1.4.4, dedicada a la discusión general.

4.1.4.2 Resultados y discusión del núcleo PA-31.

El primer testigo de sedimentos que se analizará corresponde a la plataforma continental, y fue recogido a una profundidad de 94 m. Las coordenadas del punto de muestreo son: 37° 10.7 N; 1° 46.3 W. La longitud total del sedimento era de 20 cm; sin embargo, tan sólo se midieron los primeros 17 cm. La duración de cada medida varió entre 300000 y 400000 s.

Los radionúclidos encontrados en los espectros son de origen natural (series radiactivas naturales y ^{40}K) a excepción de ^{137}Cs y ^{241}Am , que son artificiales. En la tabla 4.1.1 se muestran las concentraciones de los radionúclidos de interés. Las concentraciones de ^{226}Ra se calcularon a partir de las de su descendiente, ^{214}Pb .

Las concentraciones de ^{40}K , en torno a 750 Bq/kg, presentan un pequeño incremento con la profundidad; este aumento es más apreciable en los primeros cinco centímetros (véase la figura 4.1.4). En la capa 10-11 aparece un descenso en la concentración de ^{40}K del 10 % respecto a los valores de las secciones contiguas.

Respecto a los radionúclidos artificiales ^{137}Cs y ^{241}Am , representados gráficamente en la figura 4.1.5, se puede destacar sus menores concentraciones, inferiores a 10 Bq/kg. El perfil de ^{137}Cs frente a la profundidad presenta un máximo absoluto en la sección 3-4. A partir de este punto las concentraciones de ^{137}Cs disminuyen, con excepción de un máximo local en la capa 8-9, que no es significativo. Otro aspecto de interés del perfil de ^{137}Cs es la presencia de este radionúclido en las secciones más profundas del sedimento. Desde la capa 12-13 hasta la final la concentración se mantiene constante, en torno a 1.1 Bq/kg.

SECCION (cm)	¹³⁷ Cs	²⁴¹ Am	⁴⁰ K Bq/kg ± 1σ	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb
0-1	4.85±0.46	3.28±0.66	707.± 13.	33.1±1.3	79.2±7.4
1-2	5.59±0.50	1.53±0.45	710.± 14.	33.9±1.4	78.6±7.7
2-3	6.52±0.49	1.27±0.53	729.± 14.	38.9±1.4	87.8±7.4
3-4	7.32±0.52	1.18±0.43	740.± 14.	35.3±1.4	89.5±7.9
4-5	6.69±0.48	3.27±0.90	755.± 13.	40.3±1.5	75.1±7.9
5-6	5.44±0.52	2.33±0.57	736.± 14.	34.5±1.4	70.4±8.2
6-7	4.00±0.47	1.42±0.32	762.± 14.	38.9±1.4	59.8±7.6
7-8	3.43±0.38	1.73±0.27	759.± 12.	38.1±1.3	59.6±6.6
8-9	3.88±0.51	1.78±0.40	755.± 15.	36.0±1.4	67.7±7.8
9-10	2.61±0.44	1.31±0.32	755.± 14.	38.9±1.4	49.2±12.
10-11	1.96±0.43	<1.0	677.± 13.	37.7±1.4	55.9±7.5
11-12	1.76±0.45	<1.0	740.± 15.	44.4±1.6	47.0±11.
12-13	1.17±0.47	<1.0	770.± 15.	36.6±1.5	54.4±8.3
13-14	1.17±0.45	<1.0	755.± 14.	38.9±1.4	48.5±7.7
14-15	1.07±0.49	<1.0	759.± 14.	35.5±1.4	44.9±15.
15-16	1.10±0.32	<1.0	773.± 13.	37.4±1.3	41.1±11.
16-17	1.15±0.41	<1.0	777.± 13.	39.6±1.4	36.3±7.1
MEDIA			745.± 26.	37.5±2.8	

Tabla 4.1.1 Concentraciones, en Bq/kg, de ¹³⁷Cs, ²⁴¹Am, ⁴⁰K, ²²⁶Ra y ²¹⁰Pb en el core PA-31. Las incertidumbres corresponden a una sigma. Todas las actividades están referidas a la fecha de toma del núcleo a excepción de las de ²¹⁰Pb, que no están corregidas por decaimiento.

El perfil de ²⁴¹Am parece presentar dos máximos en la capas 0-1 y 4-5, siendo este último más significativo. A partir de la sección 9-10 no se detecta su presencia en los espectros gamma (la mínima actividad detectable de ²⁴¹Am en las condiciones de medida es 1 Bq/kg aproximadamente para un nivel de confianza del 95 %).

PROFUNDIDAD (cm)

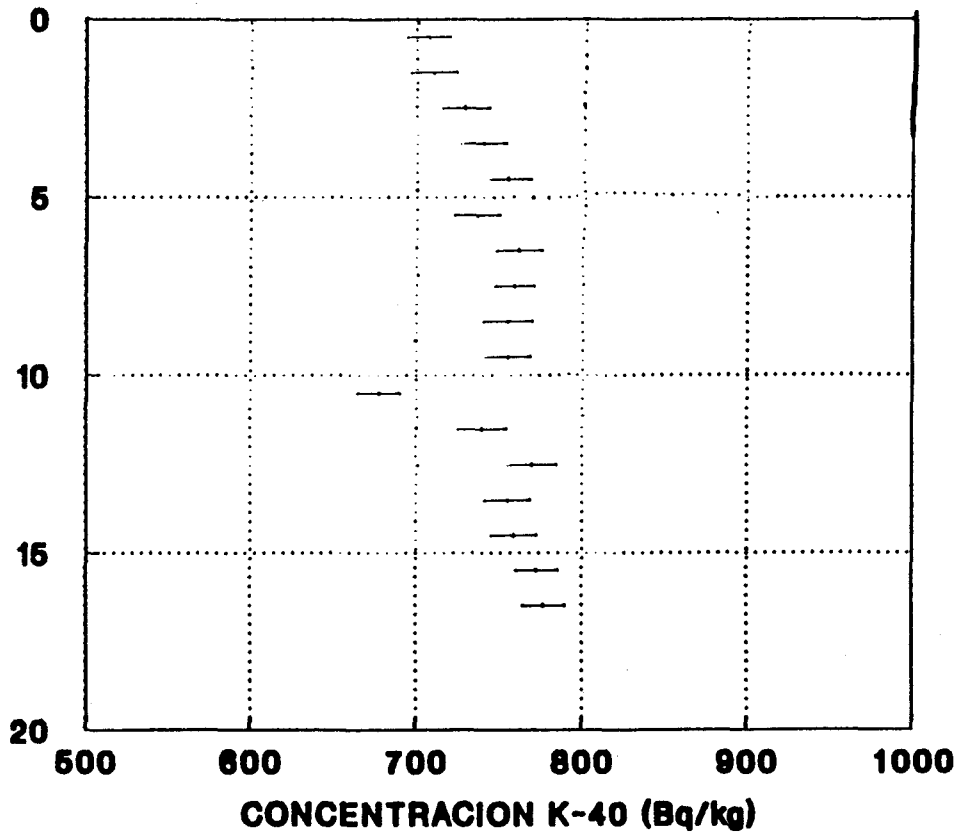


Figura 4.1.4 Concentraciones de ^{40}K en el core PA-31. Las barras de error representan una sigma.

Los máximos que aparecen en los perfiles de ^{137}Cs y ^{241}Am son atribuibles al periodo de máximas concentraciones del poso radiactivo, *fall-out*. Curiosamente, estos máximos no aparecen en la misma capa, sino en capas contiguas.

Las concentraciones de ^{226}Ra en el sedimento permanecen relativamente constantes, en torno a 37 Bq/kg, si bien parece notarse un ligera tendencia a aumentar con la profundidad. En la capa 11-12 aparece un pequeño máximo, que supone un aumento del 20 % respecto a las capas contiguas. En la figura 4.1.6 se muestra la variación de las concentraciones de ^{226}Ra y ^{210}Pb con la profundidad.

PROFUNDIDAD (cm)

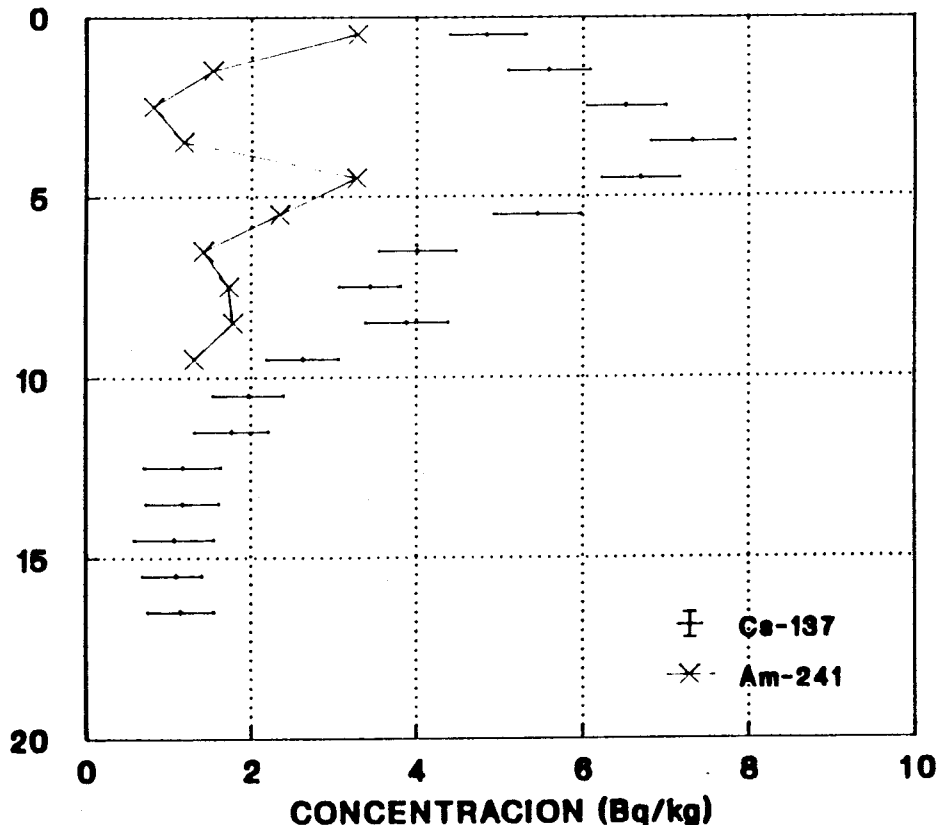


Figura 4.1.5 Perfil de concentraciones de ^{137}Cs y ^{241}Am en el núcleo de sedimentos PA-31.

La forma del perfil de concentraciones de ^{210}Pb es más compleja que la de los radionúclidos ya presentados. Se pueden distinguir varias zonas en el mismo:

- Desde la capa 0-1 hasta 3-4. La concentración de ^{210}Pb en las capas más superficiales parece aumentar con la profundidad. Este hecho no es compatible con los modelos de datación ya expuestos, que consideran el sedimento como un sistema cerrado. Este comportamiento puede atribuirse a una disolución parcial del ^{210}Pb debido a su no fijación total a la materia o a una variación en la tasa de sedimentación, y ha sido frecuentemente observado en otros sedimentos <GARCIA TENORIO-86>.

- Desde la capa 3-4 hasta 7-8. En esta región la concentración de ^{210}Pb disminuye monótonamente con la profundidad.

PROFUNDIDAD (cm)

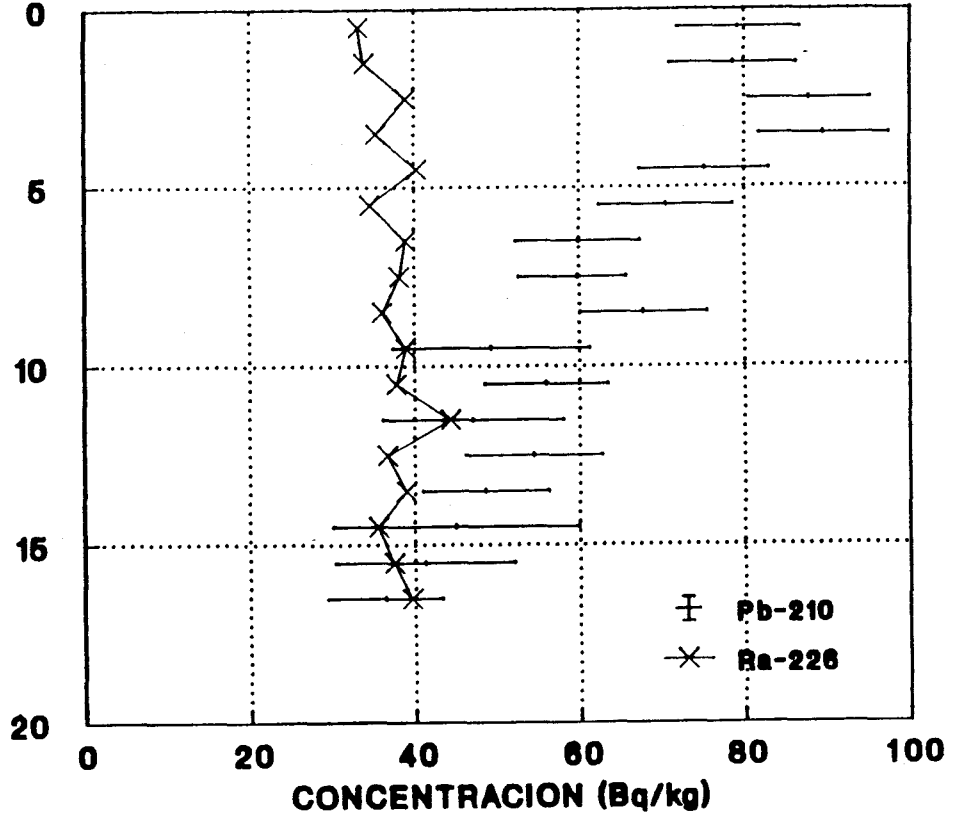


Figura 4.1.6 Perfil de concentraciones de ^{226}Ra y ^{210}Pb en el núcleo de sedimentos PA-31.

- Desde la capa 8-9 hasta 16-17. La concentración de ^{210}Pb disminuye con la profundidad, aunque muestra pequeños máximos locales en las secciones 8-9, 10-11 y 12-13. Debido a que las incertidumbres de las actividades son elevadas es bastante probable que este hecho sea motivado por una dispersión estadística. El valor de la concentración de ^{210}Pb en las últimas capas es muy parecido al de ^{226}Ra .

Además de las concentraciones de los radionúclidos medidos por espectrometría gamma, que ya han sido presentados, se dispone de las concentraciones de $^{239,240}\text{Pu}$ y ^{241}Am medidas por espectrometría alfa <GASCO-88> <ROMERO-90>, que serán de interés para la datación del core PA-31. En la tabla 4.1.2 y en la figura 4.1.7 se muestra el perfil de las concentraciones de estos radionúclidos.

SECCION (cm)	^{241}Am esp. gamma	^{241}Am esp. alfa Bq/kg $\pm 1\sigma$	$^{239+240}\text{Pu}$ esp. alfa
0-1	3.28 \pm 0.66	0.94 \pm 0.05	3.02 \pm 0.13
1-2	1.53 \pm 0.45	1.91 \pm 0.09	5.75 \pm 0.24
2-3	1.27 \pm 0.53	1.71 \pm 0.20	3.27 \pm 0.12
3-4	1.18 \pm 0.43	1.39 \pm 0.09	3.96 \pm 0.01
4-5	3.27 \pm 0.90	1.96 \pm 0.11	4.38 \pm 0.18
5-6	2.33 \pm 0.57	&	3.58 \pm 0.19
6-7	1.42 \pm 0.32	1.38 \pm 0.12	2.80 \pm 0.12
7-8	1.73 \pm 0.27	&	2.48 \pm 0.17
8-9	1.78 \pm 0.40	&	2.52 \pm 0.10
9-10	1.31 \pm 0.32	&	&
10-11	<1.0	&	&
11-12	<1.0	&	1.67 \pm 0.08
12-13	<1.0	&	&
13-14	<1.0	&	&
14-15	<1.0	&	1.35 \pm 0.13

Tabla 4.1.2 Concentraciones, en Bq/kg, de ^{241}Am , medido por espectrometría gamma y alfa, y $^{239+240}\text{Pu}$ en el núcleo PA-31. Las incertidumbres corresponden a una sigma. & muestras no analizadas.

Dos aspectos se pueden destacar de la tabla 4.1.2. En primer lugar, el buen acuerdo, dentro de los errores experimentales, entre las actividades de ^{241}Am medidas por los dos métodos, que indican la bondad de los mismos. La discrepancia en los valores de la primera capa puede ser atribuida a una distribución no homogénea del ^{241}Am . Respecto a la forma de los perfiles de concentraciones frente a la profundidad, en ambos aparece un máximo de concentración en la capa 1-2 (los resultados de espectrometría gamma presentan el primer máximo en la primera capa). En el caso del $^{239,240}\text{Pu}$ aparece también otro valor máximo de la concentración en la capa 4-5, que está suavizado para el ^{241}Am . En las últimas capas medidas aparecen concentraciones de estos isótopos, como en el caso de ^{137}Cs .

PROFUNDIDAD (cm)

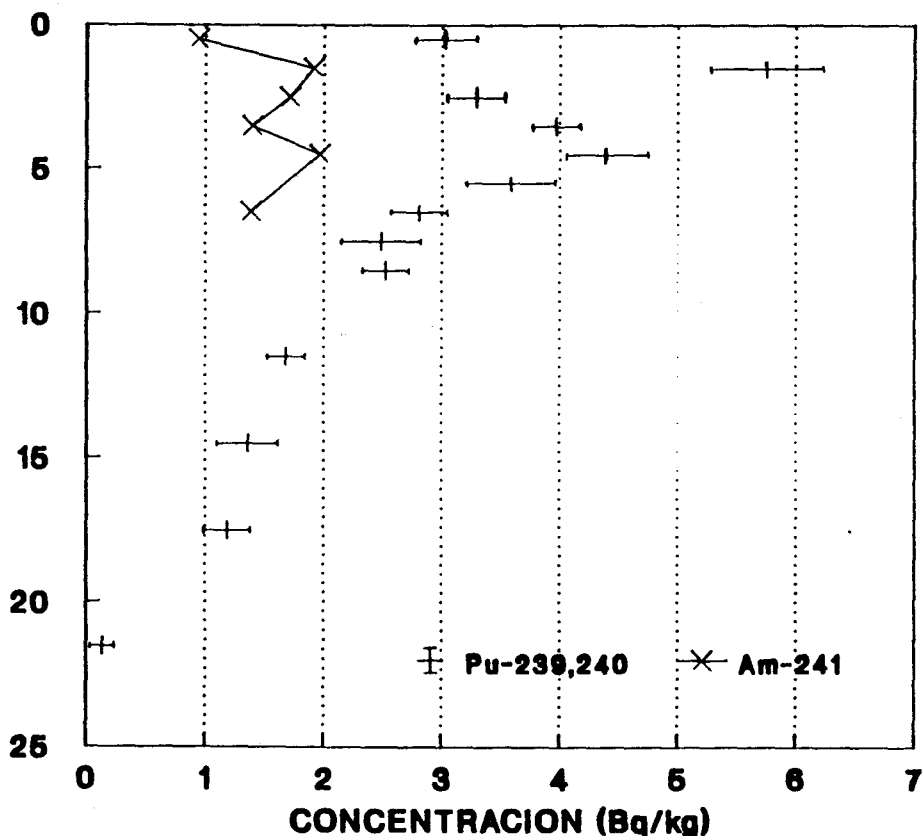


Figura 4.1.7 Perfil de concentraciones de $^{239,240}\text{Pu}$ y ^{241}Am en el core PA-31. Datos de <GASCO-88> y <ROMERO-90>.

Antes de proceder al fechado del sedimento por ^{210}Pb se ha de calcular la concentración de la fracción en exceso. Para ello restamos la concentración de ^{226}Ra medida en cada capa a la de ^{210}Pb total. A esta fracción se le aplica la corrección por decaimiento radiactivo entre la fecha de muestreo y la de medida. En la figura 4.1.8 se representa la concentración de la fracción en exceso de ^{210}Pb . Por comparación con la figura 4.1.6 se puede afirmar que la forma de los perfiles de ^{210}Pb total y en exceso no varía significativamente.

En las últimas capas de sedimento medidas el valor de la concentración de ^{210}Pb en exceso es aproximadamente nulo, indicando una antigüedad de unos 100 años al menos (cinco periodos de semidesintegración). Este hecho está en contradicción con la aparición de ^{137}Cs y $^{239,240}\text{Pu}$ en las últimas capas del sedimento y con el carácter cerrado del mismo. Más adelante se volverá a tratar este tema.

A la vista del perfil de ^{210}Pb en exceso, el modelo que parece más apropiado es el C.R.S.. Para la aplicación de este modelo se necesitan las densidades de las diferentes capas del sedimento, que se listan en la tabla 4.1.3 junto con los cálculos de la aplicación del modelo.

A partir de las densidades aparentes de cada capa se calcula el espesor másico total depositado por unidad de área hasta la capa en cuestión, columna 3, sin más que ir sumando los espesores acumulados en cada capa (que coincide en valor numérico con la densidad aparente). En la columna 4 aparecen los valores de la concentración de ^{210}Pb en exceso, ya corregidos por decaimiento. Las actividades de esta fracción depositadas por unidad de superficie en cada capa se listan en la columna 5, mientras que en la 6 se realiza la suma de éstas hasta la capa en cuestión. En la columna 7 se indica el año de formación de cada capa, mostrándose entre paréntesis el intervalo de error del mismo (calculado a partir de una sigma de la concentración medida y aplicando las fórmulas de propagación de errores).

Las edades asignadas a las diferentes capas del núcleo PA-31 van acompañadas de incertidumbres importantes, más grandes a medida que aumenta la profundidad y disminuyen las concentraciones de ^{210}Pb en exceso. Por este motivo no se calculan las edades de las últimas capas, que aparecen con un asterisco en la tabla 4.1.3.

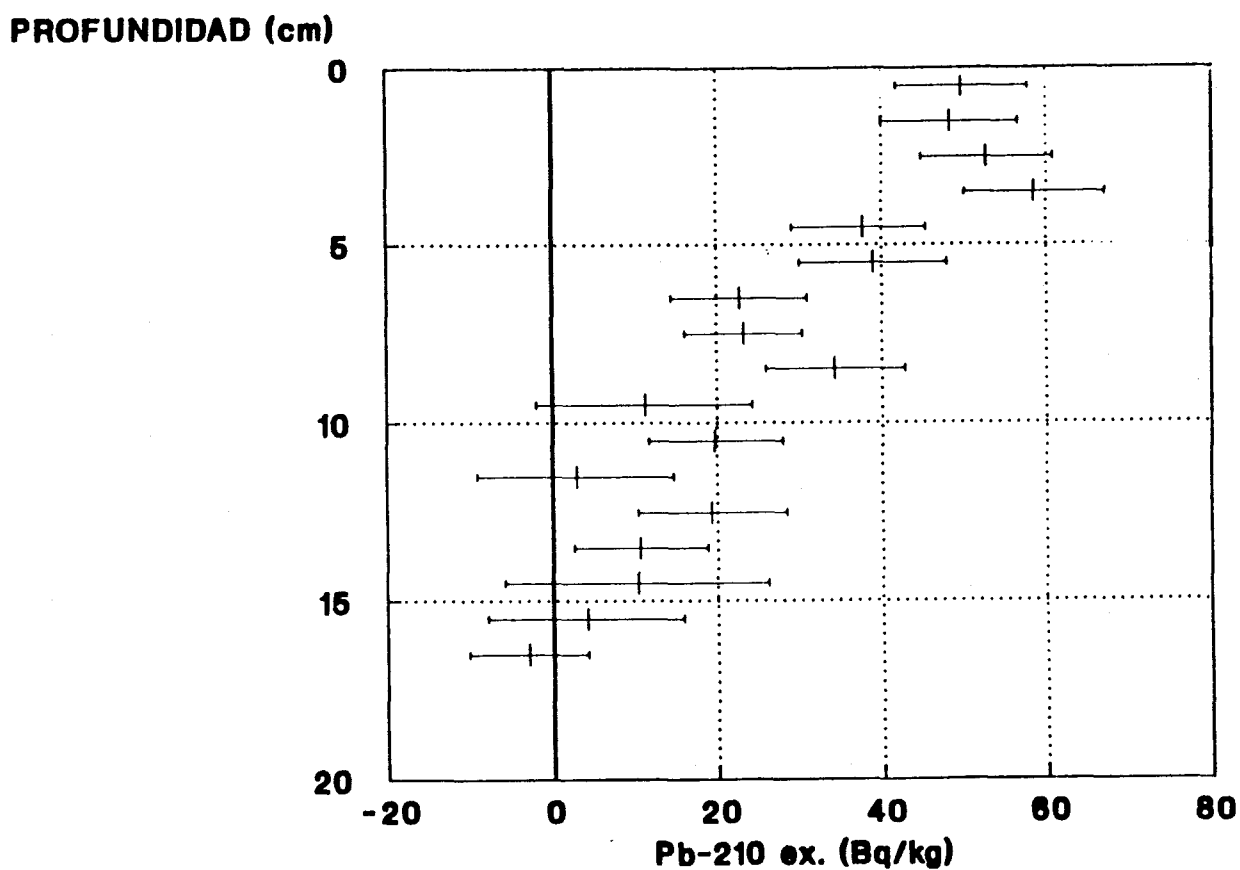


Figura 4.1.8 Perfil de ^{210}Pb en exceso frente a la profundidad del core PA-31.

SECCION	Densidad	E.másico	C _i	φ _i	Σ φ _i	EDAD	r	w
(cm)	(g/cm ³)	(g/cm ²)	(mBq/g)	(mBq/cm ²)			(g/cm ² a)	(cm/a)
0-1	1.143	1.143	49.7±8.1	56.8±9.2	56.8±9.2	1981 (77-86)	0.314	0.278
1-2	1.040	2.183	48.2±8.4	50.1±8.7	107. ±13.	1978 (73-83)	0.290	0.278
2-3	1.036	3.219	52.7±8.1	54.6±8.4	162. ±15.	1973 (68-79)	0.234	0.222
3-4	1.090	4.309	58.5±8.6	63.8±9.4	226. ±18.	1967 (62-74)	0.179	0.164
4-5	1.123	5.432	37.6±8.6	42.2±9.6	268. ±20.	1962 (56-70)	0.235	0.213
5-6	1.327	6.759	38.9±9.0	51.6±12.	320. ±23.	1955 (48-66)	0.189	0.143
6-7	1.222	7.981	22.6±8.3	27.6±10.	348. ±25.	1951 (42-63)	0.272	0.222
7-8	1.337	9.381	23.2±7.2	31.0±9.6	379. ±27.	1945 (35-60)	0.226	0.169
8-9	1.190	10.508	34.3±8.5	40.8±10.	420. ±29.	1935 (22-58)	0.120	0.100
9-10	1.156	11.664	11.1±13.	12.8±15.	433. ±33.	1931 (04-72)	0.297	0.256
10-11	1.225	12.889	19.7±8.2	24.1±10.	457. ±34.	1922 *	0.138	0.112
11-12	1.327	14.216	2.8±12.	3.7±16.	461. ±38.	1921 *	0.820	0.625
12-13	1.142	15.358	19.3±9.1	22.0±10.	483. ±39.	1909 *	0.097	0.085
13-14	1.438	16.796	10.4±8.4	15.0±12.	498. ±41.	1898 *	0.126	0.068
14-15	1.270	18.066	10.2±16.	13.0±20.	511. ±46.	1883 *	*	*
15-16	1.056	19.122	4.0±12.	4.2±12.	515. ±48.	* *	*	*
16-17	1.038	20.160	-3.0±7.2	-3.1±7.5	512. ±49.	* *	*	*

Tabla 4.1.3 Aplicación del modelo C.R.S. al núcleo de sedimentos PA-31.

La concentración máxima de ¹³⁷Cs en este núcleo aparece en la capa 3-4, a la que el modelo C.R.S. le otorga la fecha de formación de 1967. De manera análoga, el segundo máximo en las concentraciones de plutonio y americio aparece en la capa 4-5, con fecha 1962. A partir de los razonamientos expuestos en el apartado 4.1.1 parece correcta la antigüedad asignada por el modelo C.R.S., que es compatible con un origen precipitacional de estos radionúclidos. La no aparición del máximo precipitacional de los tres isótopos artificiales estudiados en la misma capa debe estar motivada por los distintos comportamientos físico-químicos en la columna de agua. En la discusión final se volverá a tratar de este tema.

El primer máximo en la concentración de $^{239,240}\text{Pu}$ se presenta en la sección 1-2, que, según el modelo aplicado, correspondería a 1978. Este máximo aparece en el caso del ^{241}Am en la primera capa del sedimento (valores calculados por espectrometría gamma) o en la segunda (valores de radioquímica). Las edades correspondientes serían 1981 y 1978 respectivamente. Dada la procedencia de las muestras, cabe pensar que el origen de este segundo máximo corresponda a los transuránidos depositados en el río Almanzora en 1966 como consecuencia del accidente de Palomares y posteriormente transportados al mar, principalmente por las grandes inundaciones ocurridas en 1973 en la zona litoral, que provocaron el desbordamiento del río Almanzora <ROMERO-88>.

La aparición de los isótopos artificiales en las capas más profundas del sedimento parece poner de manifiesto una movilidad vertical de los mismos. En efecto, hay que descartar una mezcla del sedimento, puesto que no se observan concentraciones constantes de todos los radionúclidos. La alteración de los perfiles de ^{137}Cs en sedimentos aparece mencionada en la literatura <DAVIS-84>. Datos adicionales sobre este núcleo de sedimentos se pueden encontrar en <MARTINEZ-90>.

4.1.4.3 Resultados y discusión del core PA-16.

El segundo de los núcleos de sedimentos analizados fue recogido a una profundidad de 1040 m, en el plano abisal. Las coordenadas del punto de muestreo son 37° 09.0 N; 01° 36.8 W. La longitud total del testigo de sedimentos es de 33 cm. El núcleo de sedimentos se dividió en secciones de 1 cm, siguiendo el procedimiento descrito anteriormente. Se midieron todas las secciones con profundidades inferiores a 9 cm; a partir de este punto tan sólo se midieron secciones alternas, por problemas de acumulación de muestras en el laboratorio.

Para la medida de este core se ha utilizado un detector de germanio tipo n de reciente adquisición. Este detector presenta una eficiencia relativa del 36.9 %, superior a la del antiguo. Sin embargo, la característica más importante que muestra respecto al descrito en esta memoria es su blindaje de hierro, que hace reducir el área del pico de 46.5 keV del ^{210}Pb en el espectro de fondo un factor 10 (que se comentó en la sección 3.3.2). La duración de las medidas fue mayor que en el core PA-31, entre 500000 y 800000 s. Todos estos factores se traducen en una importante disminución de las incertidumbres en las concentraciones de ^{210}Pb .

En la tabla 4.1.4 se muestran las concentraciones medidas de los radionúclidos de interés (^{137}Cs , ^{241}Am , ^{40}K , ^{226}Ra y ^{210}Pb).

Las concentraciones de ^{40}K son similares a las encontradas en el core PA-31, del orden de 670. Bq/kg, aunque presentan una mayor dispersión (la desviación estándar de la media es 37). En las capas 7-8 y 8-9 aparecen las mayores concentraciones.

SECCION m (cm)	¹³⁷ Cs	²⁴¹ Am	⁴⁰ K Bq/kg ± 1σ	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb
0-1	9.18±0.42	1.31±0.22	709.± 16.	30.2±0.9	248.3±9.5
1-2	5.22±0.27	84.0 ±3.8	625.± 14.	31.2±0.7	182.0±7.0
2-3	3.77±0.25	1.15±0.91	686.± 15.	46.6±1.1	136.2±3.7
3-4	2.43±0.22	0.72±0.52	682.± 15.	30.7±0.9	92.5±3.0
4-5	2.02±0.22	< 0.6	659.± 15.	24.2±0.7	81.4±2.8
5-6	1.12±0.23	< 0.6	670.± 16.	24.9±0.7	71.4±2.6
6-7	1.17±0.19	< 0.6	655.± 15.	24.0±0.6	61.1±2.4
7-8	< 0.6	< 0.6	749.± 17.	24.8±0.8	43.3±4.3
8-9	< 0.6	< 0.6	725.± 16.	26.2±0.8	37.0±3.1
10-11	< 0.6	< 0.6	643.± 14.	21.9±0.6	23.1±3.1
12-13	< 0.6	< 0.6	636.± 14.	22.3±0.8	21.6±3.4
14-15	< 0.6	< 0.6	636.± 14.	23.2±0.6	22.4±3.0
16-17	< 0.6	< 0.6	644.± 14.	24.2±0.6	22.7±2.0
18-19	< 0.6	< 0.6	636.± 15.	24.9±0.7	21.2±3.2
20-21	< 0.6	< 0.6	644.± 15.	27.0±0.8	24.7±4.9
MEDIA			667.±37.	27.1±6.1	

Tabla 4.1.4 Concentraciones, en Bq/kg, de ¹³⁷Cs, ²⁴¹Am, ⁴⁰K, ²²⁶Ra y ²¹⁰Pb en el core PA-16. Las incertidumbres corresponden a una sigma. Todas las actividades están referidas a la fecha de toma del núcleo a excepción de las de ²¹⁰Pb, que no están corregidas por decaimiento.

El perfil de concentraciones de ^{137}Cs es marcadamente diferente al encontrado en el core PA-31. El valor máximo de concentración está en la primera sección, para ir disminuyendo monótonamente hasta la capa 6-7. A partir de esta capa no se detecta la presencia de este radionúclido. La mínima actividad detectable de ^{137}Cs es de 0.6 Bq/kg para un nivel de confianza del 95 % y medidas de 600000 s. En la figura 4.1.9 se representan los perfiles de concentraciones de ^{137}Cs y ^{241}Am en este núcleo de sedimentos.

PROFUNDIDAD (cm)

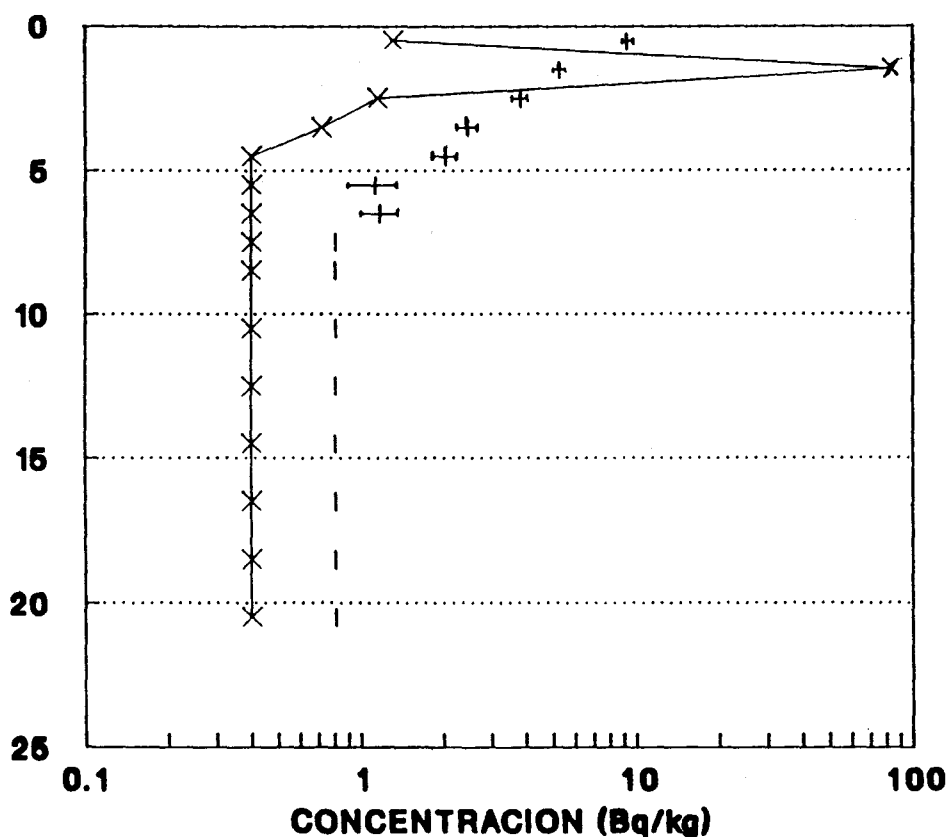


Figura 4.1.9 Concentraciones de ^{137}Cs y ^{241}Am en el core PA-16. Las barras de error de los datos de ^{137}Cs corresponden a una sigma.

El ^{241}Am muestra un perfil de concentraciones decrecientes con la profundidad, a excepción del máximo que aparece en la capa 1-2. En esta capa la concentración es de 84.

± 4. Bq/kg, valor mayor que la de ^{137}Cs , y excesivamente alto como para deberse al poso radiactivo. Desgraciadamente no existen otros resultados de ^{241}Am ni $^{239,240}\text{Pu}$ por radioquímica en esta sección del sedimento para corroborar el valor medido. Las concentraciones de ^{241}Am en las otras capas, del orden de 1 Bq/kg, son más acordes con los resultados del core PA-31 y de los otros de la misma región analizados <ROMERO-90>. A partir de la sección 4-5 no se detecta la presencia de este transuránido; el límite de detección para un nivel de confianza del 95 % y una medida de 600000 s es muy similar al de ^{137}Cs , 0.6 Bq/kg.

El perfil de concentraciones de ^{226}Ra muestra dos zonas con valores relativamente constantes. Hasta la capa 3-4 éstas están en torno a 30 Bq/kg, con un máximo significativo en la capa 2-3. Desde la capa 4-5 hasta la 20-21, última que se midió, la concentración media de ^{226}Ra es de unos 24 Bq/kg. Como en el core anterior, utilizaremos la concentración de ^{226}Ra en cada capa para el cálculo de la fracción en exceso de ^{210}Pb . Las concentraciones de ^{226}Ra , junto con las de ^{210}Pb se muestran en la figura 4.1.10.

También las concentraciones de ^{210}Pb encontradas en el core PA-16 muestran un comportamiento diferente a las de PA-31. En este caso, el perfil de concentraciones de ^{210}Pb es monótonamente decreciente hasta la capa 10-11. A partir de esta sección las concentraciones se mantienen constantes, en torno a 23 Bq/kg, valores iguales a las de ^{226}Ra en esta zona, indicando la desaparición de la fracción en exceso de ^{210}Pb .

Los valores de las concentraciones de ^{210}Pb en exceso en las diferentes capas se calculan de igual manera que en el core PA-31: restamos a la actividad de ^{210}Pb , sin aplicar correcciones por decaimiento, la de ^{226}Ra de cada capa, y el resultado se corrige por decaimiento. En la figura 4.1.11 se representa la concentración de la fracción en exceso de ^{210}Pb frente a la profundidad.

PROFUNDIDAD (cm)

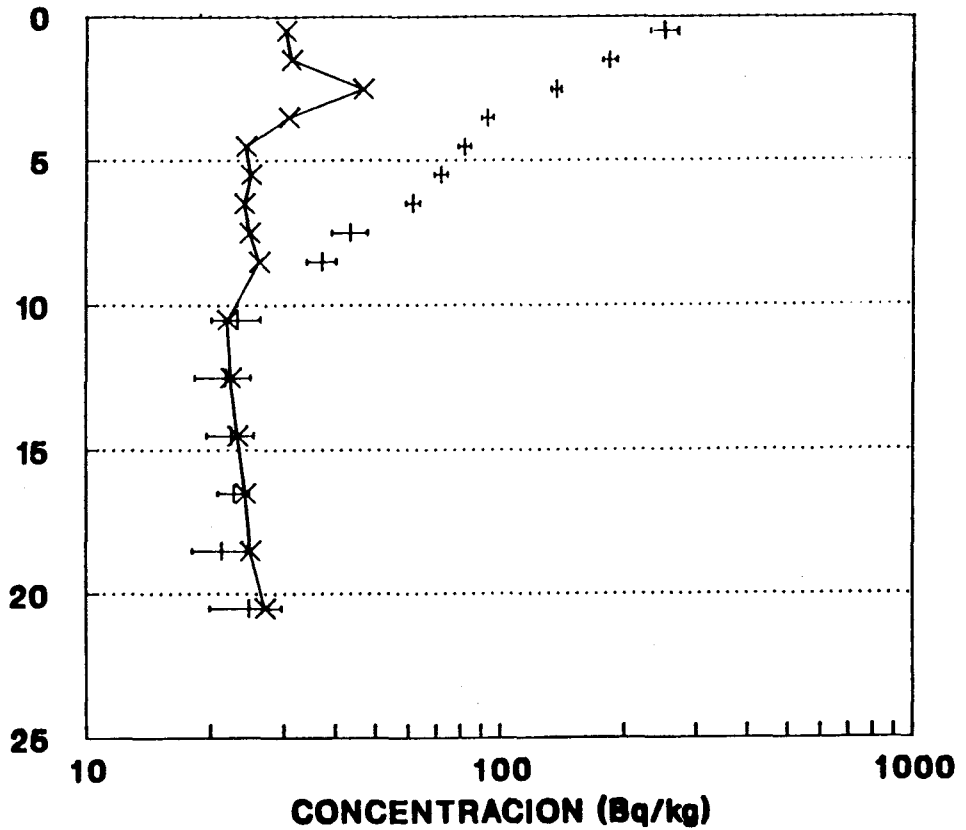


Figura 4.1.10 Concentraciones de ^{210}Pb y ^{226}Ra en el core PA-16. Las barras de error de los datos de ^{210}Pb corresponden a una sigma.

Al ser la forma del perfil de ^{210}Pb en exceso monótonamente decreciente se podrán probar los tres modelos de datación expuestos en la sección 4.1.3.

A la vista de la figura 4.1.11 se observa que el perfil de ^{210}Pb en exceso, en escala semilogarítmica, no tiene un comportamiento lineal con la profundidad en la totalidad del sedimento. Ajustando los logaritmos neperianos de las actividades a una recta en función de la profundidad se obtienen los siguientes valores:

$$\begin{aligned}
 C(0) &= 392. \pm 112. \quad \text{Bq/kg} \\
 w &= 0.0710 \pm 0.0073 \text{ cm/a} \\
 C.\text{corr.} &= -0.95531
 \end{aligned}$$

Si se realiza el ajuste en función del espesor de materia depositado, que se muestra en la tabla 4.1.5, se obtienen los siguientes valores:

$$\begin{aligned}
 C(0) &= 401. \pm 120. \quad \text{Bq/kg} \\
 r &= 0.0556 \pm 0.0060 \text{ g/cm}^2\text{a} \\
 C.\text{corr.} &= - 0.95096
 \end{aligned}$$

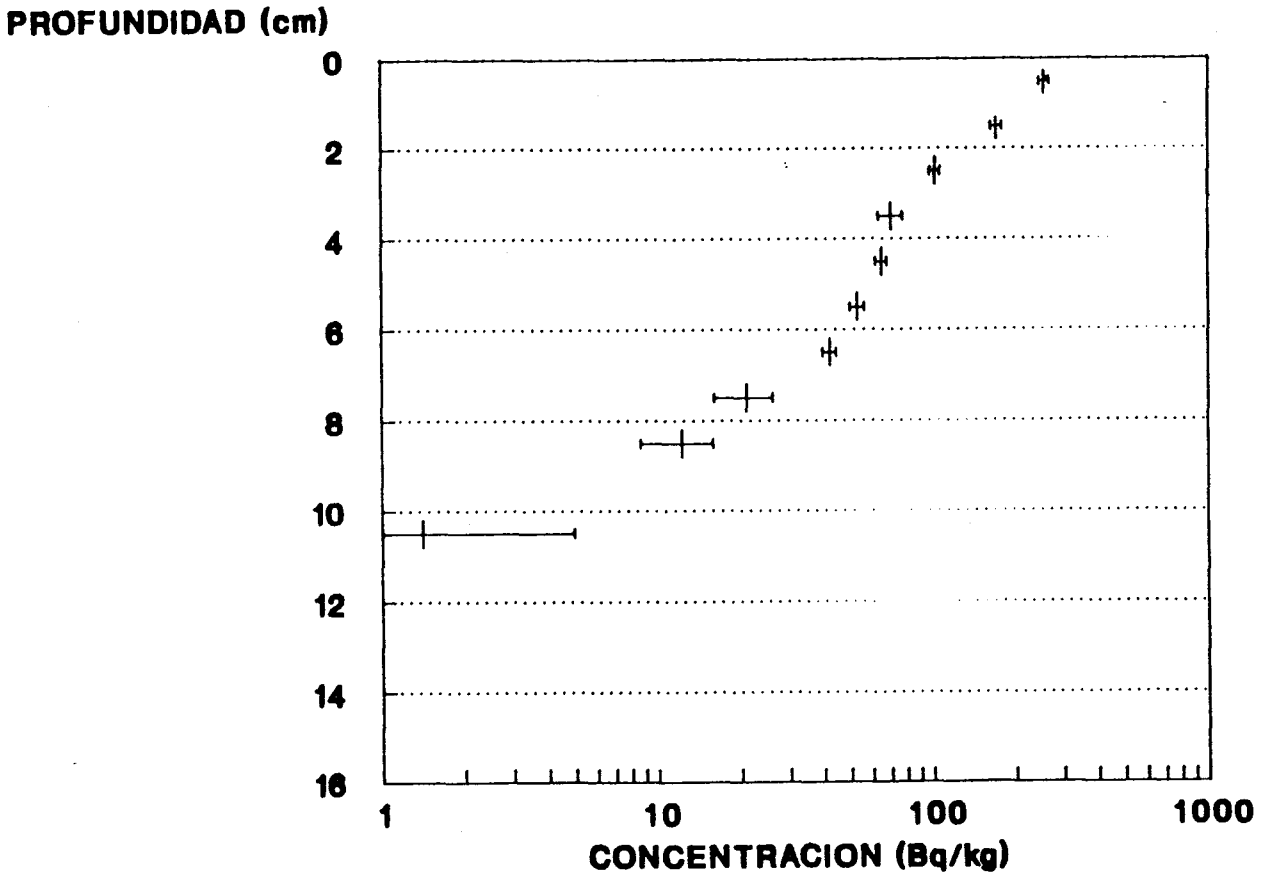


Figura 4.1.11 Concentración de la fracción de ²¹⁰Pb en exceso del core PA-16. Las barras de error corresponden a una sigma.

Se observa que los resultados de ambos ajustes son prácticamente equivalentes, lo que quiere decir que no hay necesidad de realizar correcciones por compactación. Las edades atribuidas a cada sección del sedimento se calculan sin más que dividir la profundidad (o el espesor másico depositado) entre la velocidad de sedimentación, y se mostrarán más adelante, en la tabla 4.1.6, al comparar los resultados de los tres modelos.

En segundo lugar se aplicará el modelo C.I.C.; para ello es necesario estimar la concentración inicial de ^{210}Pb . El valor medido en la primera capa no es válido, ya que a ésta le corresponderá un determinado periodo de formación. El camino que se seguirá es el de ajustar las concentraciones de las cuatro primeras capas para obtener dicho valor. Los resultados de dicho ajuste son los siguientes:

$$\begin{aligned}C(0) &= 318. \pm 13. \text{ Bq/kg} \\C.\text{corr.} &= -0.99835\end{aligned}$$

El valor encontrado de la concentración inicial de ^{210}Pb en exceso es parecido al del modelo C.F.:C.S., aunque la incertidumbre sea menor por el mejor ajuste (compárense los coeficientes de correlación).

Aplicando ahora la ecuación [4.3] se calculan las edades de las diferentes capas, que se presentarán en la tabla 4.1.6 junto con las derivadas por los demás modelos.

El modelo C.R.S. se aplicará de forma similar a como se hizo en el core PA-31, y los resultados del cálculo se muestran en la tabla 4.1.5. Al igual que ocurriera en el core PA-31, no se incluyen las incertidumbres de las edades de las últimas capas, al aparecer en la expresión el logaritmo de un número negativo. El valor de $A(\infty)$ utilizado para los cálculos es de $560. \pm 15. \text{ Bq/cm}^2$.

A propósito de la tabla 4.1.5 sorprende el menor valor de las densidades aparentes de las diferentes secciones del sedimento respecto al anteriormente analizado. El valor medio de esta magnitud es 0.74 g/cm^3 con una desviación estándar de 0.11. Probablemente la mayor proporción de materia orgánica y el menor contenido de arena en este sedimento sea la razón de las menores densidades.

SECCION	Densidad	E.másico	C_i	ϕ_i	$\Sigma \phi_i$	EDAD	r	w
(cm)	(g/cm^3)	(g/cm^2)	(mBq/g)	(mBq/cm ²)			($\text{g/cm}^2\text{a}$)	(cm/a)
0-1	0.620	0.620	255. ±11.	158.1±6.8	158.1±6.8	1975 (74-76)	0.058	0.094
1-2	0.516	1.136	172.0±8.0	88.8±4.1	246.9±11.	1967 (66-69)	0.064	0.107
2-3	0.844	1.980	104.1±4.4	87.9±3.7	334.7±11.	1957 (54-59)	0.080	0.102
3-4	0.751	2.731	71.8±3.6	53.9±2.7	388.6±12.	1948 (45-51)	0.085	0.105
4-5	0.766	3.497	65.6±3.3	50.2±2.5	438.9±12.	1937 (33-41)	0.069	0.101
5-6	0.774	4.271	53.5±3.1	41.4±2.4	480.3±12.	1923 (18-30)	0.058	0.096
6-7	0.913	5.184	43.1±2.8	39.4±2.6	519.6±12.	1901 (91-16)	0.042	0.083
7-8	0.810	5.994	21.9±5.0	17.7±4.1	537.4±13.	1883 (66-20)	0.043	0.077
8-9	0.752	6.746	13.5±3.6	10.2±2.7	547.5±13.	1863 *	0.039	0.074
9-10	0.781	7.527	8.3±3.5#	6.5±2.7	554.0±14.	1840 *	0.033	0.068
10-11	0.617	8.144	3.1±3.5	1.9±2.2	555.9±14.	1827 *	0.050	0.069
11-12	0.759	8.903	1.7±3.5#	1.3±2.7	557.2±12.	1815 *	0.062	0.070

Tabla 4.1.5 Aplicación del modelo C.R.S. al núcleo de sedimentos PA-16. #: La concentración de esta capa no se midió, y el resultado ha sido interpolado.

Las edades calculadas con los tres modelos se esquematizan en la tabla 4.1.6. Los modelos que muestran un mayor acuerdo en sus predicciones son el C.I.C. y el C.F.:C.S. Las edades asignadas a las cuatro primeras secciones son compatibles entre sí. Por otra parte, se observa una coincidencia entre los resultados de los modelos C.R.S. y C.I.C. en las capas 4-5 y 5-6. Es destacable la coincidencia de las edades asignadas por los tres modelos a la segunda capa del núcleo.

De las predicciones de los tres modelos cabría esperar la desaparición de los radionúclidos artificiales a partir de la sección 2-3. Este hecho no se produce, ya que se ha detectado ^{137}Cs hasta la capa 6-7 y ^{241}Am hasta la 3-4. Se repite el comportamiento anómalo de estos radionúclidos, ya observado en el núcleo PA-31, y que se atribuyó a la movilidad vertical de éstos.

PROF cm	C.F.:C.S.		C.I.C.		C.R.S.	
	Año	$\pm 1\sigma$	Año	$\pm 1\sigma$	Año	$\pm 1\sigma$
0-1	1979	(1978-80)	1979	(1977-81)	1975	(1974-76)
1-2	1965	(1963-67)	1966	(1964-68)	1967	(1966-69)
2-3	1951	(1948-53)	1950	(1948-52)	1957	(1954-59)
3-4	1937	(1931-42)	1938	(1936-40)	1948	(1945-51)
4-5	1922	(1916-29)	1935	(1933-37)	1937	(1933-41)
5-6	1908	(1900-16)	1929	(1926-31)	1923	(1918-30)
6-7	1894	(1885-1904)	1922	(1919-24)	1901	(1891-1916)
7-8	1880	(1869-91)	1900	(1892-1907)	1883	(1866-1920)
8-9	1866	(1854-78)	1884	(1876-93)	1863	*
9-10	1852	(1838-66)	1869	(1855-83)	1840	*
10-11	1838	(1823-53)	1837	(1801-73)	1827	*

Tabla 4.1.6 Comparación de las predicciones de los tres modelos de datación en el core PA-16.

La aparición de la máxima concentración de ^{137}Cs en la primera capa del sedimento puede deberse bien a un fenómeno de transporte de este radionúclido hacia la interfase agua sedimento o bien a que esta capa sea más antigua de lo que predicen los

modelos de datación de ^{210}Pb aplicados. La presencia de un máximo de concentración de ^{241}Am en la capa inmediatamente inferior descarta la última de las posibilidades. Por otra parte, el ^{137}Cs presenta un comportamiento conservativo en la columna de agua, siendo el tiempo de residencia en ésta elevado. Esta es la razón por la que el perfil de concentraciones de este radionúclido en el sedimento no reproduzca las concentraciones en la atmósfera. Recordemos que la columna de agua en este sedimento es de 1000 metros.

Un punto que queda por explicar es la aparición del máximo de concentración de ^{241}Am en la segunda capa del sedimento. Las edades asignadas por los modelos de ^{210}Pb hacen corresponder esta sección del sedimento con los años de máximas concentraciones de radionúclidos artificiales en la atmósfera, 1963-64. Sin embargo, el elevado valor de esta concentración no es compatible con que sea debida al fall out; por estas razones se procedió a analizar más detenidamente esta muestra.

La muestra correspondiente a la sección 1-2 cm del core PA-16 se sometió a un análisis radioquímico de ^{241}Am sobre una alícuota de 10 g; la concentración medida fue de 2 Bq/kg, valor muy inferior al medido por espectrometría gamma. La muestra medida en espectrometría gamma fue subdividida en porciones de 11 g que fueron medidas de nuevo. De estas cuatro muestras tan sólo en una de ellas se detectó ^{241}Am , en una concentración de $596. \pm 19$. Bq/kg. Posteriormente se volvió a subdividir la muestra que dio un resultado positivo de ^{241}Am en porciones de 2.75 g aproximadamente. Nuevamente se observó la presencia de actividad de este radionúclido en tan sólo una de las submuestras, con concentración de $3540. \pm 140$. Bq/kg. Estos resultados evidencian la presencia de una partícula caliente, *hot particle*, cuya actividad total de ^{241}Am es de unos 10 Bq. De los resultados de la datación por ^{210}Pb parece deducirse que esta partícula no llegó al sedimento como consecuencia de la riada de 1973, caso del máximo del núcleo PA-31, sino en el momento del accidente. Recordemos que este núcleo de sedimentos fue recogido

a una profundidad de 1000 m. Se han realizado análisis posteriores para determinar la concentración de elementos transuránicos en esta partícula, que no se detallan al quedar fuera del tema de esta memoria <ROMERO-91>.

4.1.5 Discusión.

De los resultados correspondientes a los dos testigos de sedimentos presentados en las dos secciones anteriores se pueden sacar algunas conclusiones interesantes.

La aplicación del detector ReGe a la medida de sedimentos permite la determinación simultánea de varios radionúclidos útiles para determinar la cronología del sedimento en cuestión. Los perfiles de ^{210}Pb en exceso en estos dos sedimentos son marcadamente diferentes.

La presencia de ^{137}Cs y ^{241}Am en capas profundas de los sedimentos confirma la movilidad de estos radionúclidos en los sedimentos estudiados.

Los valores de la concentración de ^{137}Cs medidos en seis cores de la zona se han empleado para calcular el inventario de este radionúclido en la zona sur oeste del Mar Mediterráneo. Al no haber instalaciones nucleares en la zona de muestreo el origen del ^{137}Cs será de poseso radiactivo global, *fall out*. En la tabla 4.1.9 se presentan dichos valores junto con la profundidad a la que se tomó el sedimento y las coordenadas del punto de muestreo.

Se puede observar una tendencia a disminuir los inventarios de ^{137}Cs a medida que aumenta la profundidad. Este hecho es atribuible por una parte a la contribución de la fracción de este radionúclido depositada en tierra y posteriormente arrastrada al mar. Además, el comportamiento conservativo del ^{137}Cs en la columna de agua hace que a medida que aumenta la profundidad de ésta lo haga también el tiempo de

residencia de este radionúclido en el agua. Las formas marcadamente diferentes de los perfiles de ^{137}Cs encontradas en los dos núcleos de sedimentos presentados junto con el dato de que sólo el 5 % del ^{137}Cs está en los sedimentos del Mediterráneo <HOLM-88> corroboran esta afirmación.

En la literatura no existen muchos datos sobre inventarios de ^{137}Cs en el Mar Mediterráneo. Whitehead estima el inventario global de ^{137}Cs en los sedimentos del Mar Mediterráneo en 0.5 ± 0.2 PBq <WHITEHEAD-88>. A partir de este dato y de la superficie de este mar, también tomada de la misma referencia, se obtiene un valor de $168. \pm 67.$ Bq/m², en buen acuerdo con el valor medido en el core PA-16, el más profundo de todos.

CORE	PROF. (m)	COORDENADAS		INVENTARIO Cs-137 (Bq/m ²)
12	58	37° 16.4' N	1° 43.5' W	444. ± 48.
30	64	37° 8.1' N	1° 48.5' W	825. ± 46.
29	78	37° 4.4' N	1° 49.8' W	659. ± 50.
31	94	37° 10.7' N	1° 46.3' W	649. ± 44.
20	200	37° 6.8' N	1° 47.5' W	305. ± 28.
16	1000	37° 9.0' N	1° 36.8' W	168. ± 20.

Tabla 4.1.9 Inventarios de ^{137}Cs medidos en seis núcleos de sedimentos del sur oeste del Mar Mediterráneo.

Los únicos resultados de inventarios de ^{137}Cs en el Mar Mediterráneo que se han encontrado en la bibliografía consultada son los de Delfanti y Papucci correspondientes a sedimentos del Mar Tirreno recogidos cerca de la orilla (profundidades entre 20 y 100 m) <DELFANTI-86>. La presencia de una central nuclear en las cercanías de los puntos de muestreo impide la generalización

de los resultados. Los inventarios de ^{137}Cs reportados en esta publicación están comprendidos entre 210 y 3400 Bq/m², superiores a los presentados en esta memoria.

Dado que la distribución global de los radionúclidos del poso radiactivo sigue fundamentalmente un comportamiento según la latitud, se mencionarán los inventarios de ^{137}Cs medidos en las costas este y oeste de EE.UU. en latitudes parecidas a las de Palomares. Los valores presentados por Livingston y Bowen para la costa noreste de EE.UU. (coordenadas 40°-46° N y 68°-70° W) son 300. ± 126. Bq/m² en sedimentos próximos a la orilla (profundidades entre 12 y 32 m) y 104. ± 37. Bq/m² en la plataforma continental, con profundidades entre 207 y 264 m <LIVINGSTON-79>. El inventario de la costa noroeste de EE.UU. (coordenadas 46°-48° N, 124°-125° W) para profundidades entre 75 y 230 m es de 1440. ± 440. Bq/m² <BEASLEY-82>. En este segundo caso hay que considerar que una parte importante del ^{137}Cs proviene de las instalaciones nucleares de Hanford, en el río Columbia. Los inventarios que se presentan en esta memoria están dentro del orden de magnitud de estos últimos.

Los valores del flujo y del inventario de ^{210}Pb en exceso que corresponden a los dos cores de sedimentos presentados en esta memoria y a los otros cuatro medidos se presentan en la tabla 4.1.10. Estos parámetros se han calculado aplicando el modelo C.R.S. a los núcleos de sedimentos. En el caso del ^{210}Pb en exceso, su distribución en el planeta no sólo depende de la latitud, sino que también se ve afectada por la longitud, al no ser la distribución de tierras y océanos homogénea <CHERRY-88>.

Buesseler et al. encuentran inventarios de ^{210}Pb en exceso comprendidos entre 3.3 y 13.3 kBq/m² en sedimentos de la costa noreste de EE.UU. <BUESSELER-86>. Los valores presentados en esta memoria están dentro de los márgenes encontrados por Buesseler et al., a pesar de la diferente longitud de los puntos de muestreo (1° W de los sedimentos del Mediterráneo frente a 70° W de la costa atlántica de EE.UU.).

CORE	PROF. (m)	INVENTARIO (kBq/m ²)	FLUJO (kBq/m ² a)
12	58	4.24 ± 0.41	0.132 ± 0.013
30	64	5.70 ± 0.50	0.177 ± 0.016
29	78	5.10 ± 0.53	0.159 ± 0.016
31	94	5.15 ± 0.48	0.160 ± 0.015
20	200	6.20 ± 0.45	0.193 ± 0.014
16	1000	5.60 ± 0.12	0.174 ± 0.004

Tabla 4.1.10 Inventarios y flujos de ²¹⁰Pb medidos en seis núcleos de sedimentos del sur oeste del Mar Mediterráneo.

Otros datos referentes a la costa noreste americana son los de Helz et al., que estudian la distribución de ²¹⁰Pb en exceso en la bahía de Chesapeake (coordenadas 38° N 76° W). Los inventarios presentados están comprendidos entre 3.7 y 14.7 kBq/m² <HELZ-86>.

Por otra parte, se encuentran en la literatura los inventarios de ²¹⁰Pb en exceso medidos en sedimentos del noroeste de EE.UU. <CARPENTER-81>. En este caso, el valor medio reportado es 22.5 ± 9.1 kBq/m².

Desgraciadamente no se han podido encontrar inventarios o flujos de ²¹⁰Pb en exceso para la zona mediterránea, que habrían sido comparables a los aquí presentados. Sin embargo, contamos con algunos datos proporcionados por El-Daoushy correspondientes al Mar Báltico; los flujos presentados por este autor están comprendidos entre 0.13 y 0.26 kBq/m²a <EL-DAOUSHY-86>. El intervalo de flujos que se ha encontrado en los sedimentos medidos es 0.13 a 0.19 kBq/m²a, en buen acuerdo con los anteriores.

4.2 ANALISIS ESPECTROMETRICO DE MUESTRAS PROCEDENTES DE INSTALACIONES DE TRATAMIENTO DE MINERALES DE URANIO

La utilización de la energía nuclear para la generación de electricidad lleva asociado un conjunto de actividades conocidas comunmente por el nombre de ciclo del combustible nuclear.

El ciclo del combustible nuclear comienza con la exploración y explotación de yacimientos uraníferos. Los minerales extraídos son sometidos a diversos tratamientos físicos y químicos para concentrar el uranio, denominados *mining* y *milling* en la terminología anglosajona. Los concentrados de uranio necesitan una mayor purificación y enriquecimiento en el isótopo fisible, ^{235}U , antes de que se puedan elaborar los elementos combustibles. A toda esta serie de actividades, desde la extracción de los minerales de uranio a la fabricación de los elementos combustibles, se le denomina primera fase del ciclo del combustible nuclear.

La utilización de los elementos combustibles para la generación de electricidad constituye la segunda fase del ciclo, y tiene lugar en los reactores nucleares. Una vez se agota la capacidad energética del combustible, éste ha de ser sustituido. Los elementos combustibles gastados contienen grandes cantidades de radionúclidos, y en consecuencia son altamente radiactivos. Se inicia entonces la tercera fase del ciclo, que comprende el acondicionamiento y almacenamiento del combustible gastado (ciclo abierto) o puede incluirse una etapa de reprocesado para la recuperación del material fisible presente y la separación de los residuos de alta actividad (ciclo cerrado).

En esta sección nos centraremos en las etapas de concentración de los minerales de uranio, y se presentarán algunas de las aportaciones realizadas en la Unidad Operativa de Control Radiológico Externo del CIEMAT para la caracterización

de materiales de esta fase del ciclo del combustible nuclear; en concreto, aquellas en las que se emplearon los dos sistemas detectores descritos en esta memoria.

4.2.1 Características de la zona de muestreo.

Las muestras estudiadas en este capítulo proceden de las instalaciones y alrededores de la antigua Fábrica de Uranio de Andújar, Jaén, que en lo que sigue denominaremos como FUA. Gran parte de los datos que se presentan sobre la descripción y funcionamiento de la FUA se tomaron de <IÑARA-89> y de comunicaciones personales con técnicos del CIEMAT y de ENRESA que colaboraron en el estudio de desmantelamiento y clausura de las instalaciones.

4.2.1.1 Descripción y funcionamiento de la FUA.

La FUA fue la primera instalación para el tratamiento de minerales de uranio que se puso en marcha en España; fue diseñada a mediados de los años 50, y entró en funcionamiento en 1959. El objeto de la fábrica era el beneficio de minerales de uranio de baja ley (1.5 por mil de U_3O_8) y la obtención de un concentrado de uranio con riqueza del 80 % en U_3O_8 . Adicionalmente, durante el periodo comprendido entre 1962 y 67 se obtuvieron concentrados de cobre, al tratarse minerales mixtos de uranio y cobre.

En el año 1981 se cierran las instalaciones de la FUA. En los 22 años de funcionamiento de la fábrica se trataron un total de 1,218.100 toneladas de mineral de uranio de diferentes procedencias, produciéndose 1354 t de U_3O_8 con un grado de pureza comprendido entre 80 y 85 %. Por el volumen de mineral tratado se puede considerar la FUA como de tamaño medio o pequeño. La riqueza media de los minerales tratados es del 1.23 por mil en U_3O_8 , parecida a otras plantas referenciadas en la bibliografía <KATHREN-84>. En la figura 4.2.1 se muestra un plano de las instalaciones de la FUA.

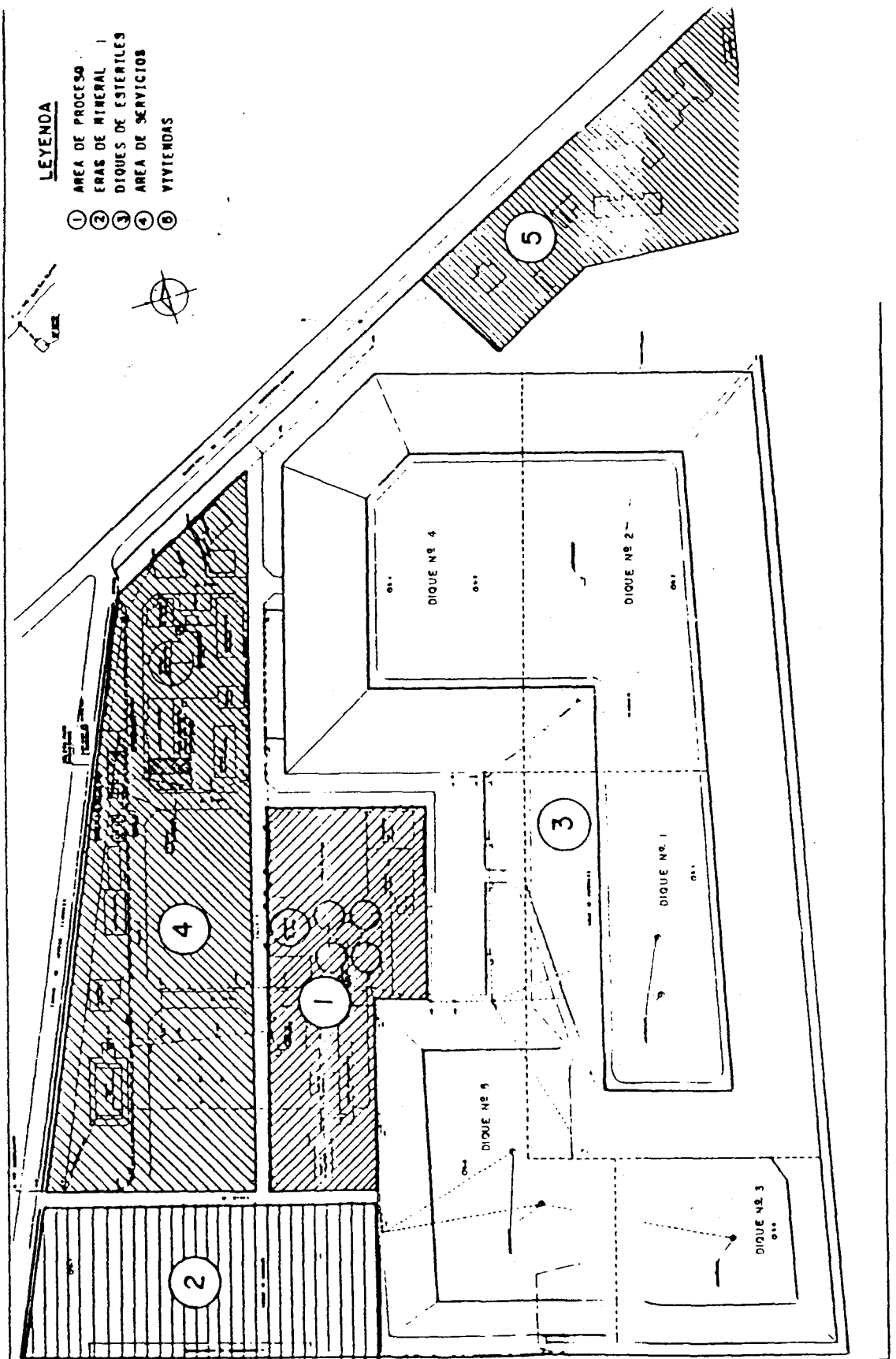


Figura 4.2.1 Plano de las instalaciones de la Fábrica de Uranio de Andújar.

El proceso de fabricación de los concentrados de uranio comprendía las siguientes fases:

- Preparación de los minerales. El pretratamiento de los minerales consistía en trituración, tostado y trituración húmeda. El objeto de estas medidas es el de conseguir una uniformidad en el contenido de uranio y la granulometría apropiada para la siguiente fase.

- Lixiviación ácida del mineral. La pasta o pulpa formada en la etapa anterior se atacaba con ácido sulfúrico para solubilizar el uranio.

- Extracción del uranio. El uranio solubilizado se recuperaba posteriormente por cambio de ión o por extracción con disolventes orgánicos, una vez acondicionado el pH.

- Precipitación del uranio. El uranio contenido en la solución acuosa obtenida de la etapa anterior se precipitaba como uranato sódico o amónico. Este precipitado, una vez secado, constituía el concentrado final de uranio, con una riqueza entre el 80 y el 85 % en U_3O_8 .

Los residuos generados se pueden clasificar en pulpas de estériles y soluciones agotadas. Las pulpas de estériles estaban constituidas por el grueso de la pulpa inicial una vez solubilizado el uranio. Dada su naturaleza ácida, se neutralizaban con cal viva, CaO , precipitándose los metales y radionúclidos presentes. Este proceso tenía lugar en balsas; los materiales sólidos resultantes se almacenaban en los diques de estériles. Las soluciones agotadas junto con las soluciones procedentes del drenaje de los diques se sometían a neutralización y precipitación; los materiales sólidos eran añadidos a los diques de estériles mientras que los líquidos, ya

tratados, eran vertidos al río Guadalquivir una vez comprobada la actividad y la concentración de sulfatos y metales.

Como consecuencia del funcionamiento de la FUA se generaron aproximadamente 1.2 millones de toneladas de estériles, almacenados en diques. El volumen de estos diques de estériles es de 980.000 m³.

4.2.1.2 Características e importancia de los estériles.

La fabricación de concentrados de uranio tiene como característica principal el tratamiento de un gran volumen de minerales con baja ley. En estos minerales se encuentra el ²³⁸U en equilibrio con el resto de los descendientes de su serie radiactiva. En la figura 4.1.2 se muestra un diagrama de la serie radiactiva del ²³⁸U.

Como consecuencia del tratamiento de los minerales tiene lugar la separación de los diferentes radionúclidos de las series del ²³⁸U y ²³⁵U. Estos radionúclidos van a parar, en su mayor parte, a los diques de estériles junto con la fracción de uranio no extraído. Debido a la presencia de radionúclidos con largos periodos de semidesintegración, los estériles del tratamiento del mineral pueden constituir una fuente de radiación a largo plazo <OCDE-84>. Por esta razón en la actualidad es normativo realizar acciones correctoras, las cuales incluyen lógicamente la caracterización del contenido radiactivo de los estériles y la verificación de la ausencia de contaminación en los alrededores.

Las fuentes potenciales de exposición asociadas a las instalaciones de concentración de minerales de uranio y en concreto a los diques de estériles son <EISENBUD-87>:

- Exposición directa a la radiación gamma.
- Emanación del gas radón de los diques.

- Resuspensión de ^{230}Th y ^{226}Ra .

- Solubilización y paso de radionúclidos a través de efluentes líquidos y aguas subterráneas.

A la vista de la figura 4.1.2 podemos enumerar los diferentes radionúclidos que presentan interés, desde el punto de vista de la protección radiológica, en los diques de estériles:

- El uranio no extraído en el proceso consiste fundamentalmente en los isótopos de uranio ^{238}U y ^{234}U , ambos con elevados periodos de semidesintegración. A éstos hay que añadir el ^{235}U , padre de la serie natural $4n + 3$. Los isótopos de uranio estarán presentes en las escombreras, aunque, lógicamente, en concentraciones menos elevadas que en el mineral, por lo que su importancia radiológica no será tan acusada como la de sus descendientes.

- El ^{230}Th , con un periodo de semidesintegración de $8 \cdot 10^5$ años, constituye el primer descendiente de interés. El torio se solubiliza con el uranio durante la lixiviación, si bien se separa posteriormente en el tratamiento de purificación del uranio. Solamente entre 1 y 5 % del torio queda en el concentrado final de uranio. El ^{230}Th es el actínido natural con mayor trascendencia radiológica <HARLEY-79>.

- El ^{226}Ra , con un periodo de semidesintegración de 1600 años, es el siguiente radionúclido a tener en cuenta en los estériles. Al igual que el ^{230}Th , el ^{226}Ra es emisor alfa, y presenta una elevada toxicidad radiológica motivada por varios hechos: el radio es un elemento alcalinotérreo, y su comportamiento químico y bioquímico es similar al del calcio, por lo que es

metabolizado por animales y plantas, de los que puede pasar al hombre por ingestión. Por otra parte, el descendiente inmediato del ^{226}Ra es el ^{222}Rn , también emisor alfa, con un alto índice de toxicidad radiológica. El radio de los estériles está fundamentalmente en forma de sulfato, insoluble, por lo que es poco móvil.

- El ^{222}Rn es un gas noble con un periodo de semidesintegración de 3.82 días. El radón emana de los estériles en proporción dependiente de la protección de los diques (presencia y constitución de las barreras físicas de los diques). Los cuatro descendientes inmediatos del radón presentan cortos periodos de semidesintegración, y estarán en equilibrio con éste. Entre estos descendientes hay dos emisores alfa y otros dos beta. La importancia radiológica del radón y sus hijos se pone de manifiesto al considerar que son responsables de aproximadamente la mitad de la dosis equivalente efectiva recibida por la población <UNSCEAR-82>. Dado su corto periodo de semidesintegración, la concentración de radón estará regulada por la de sus precursores, ^{226}Ra y ^{230}Th , en los estériles.

- El ^{210}Pb es el último radionúclido con periodo considerable, 22.3 años. Es un emisor beta débil, cuya trascendencia radiológica viene motivada principalmente por su descendiente, el ^{210}Po , emisor alfa incluido dentro del grupo de radionúclidos de mayor radiotoxicidad <MORGAN-64>.

Las actividades de los radionúclidos naturales involucrados en el funcionamiento de la FUA se pueden calcular utilizando la masa y la riqueza media en uranio de los minerales tratados, 1,218.098 t y 1.23 por mil en U_3O_8 respectivamente, la cantidad y riqueza media de los concentrados de uranio

fabricados, 1354 t y 82 % en U_3O_8 respectivamente, y la actividad específica del uranio. Con estos datos de partida se han calculado las actividades de los tres isótopos naturales de uranio, que se muestran en la tabla 4.2.1.

Son varios los comentarios que se pueden hacer sobre la tabla 4.2.1. En primer lugar, las actividades que se manejan hacen que todavía sea habitual utilizar el curio como unidad. Para el cálculo de la actividad en los estériles se ha supuesto que el uranio que no ha pasado a los concentrados se encuentra en los estériles. Todos los cálculos se han realizado partiendo de los valores medios de contenido de uranio en los minerales y en los concentrados; por tanto, los números de la tabla tienen un valor representativo medio.

	Actividad específica U	Actividad en minerales	Actividad en concentrados	Actividad en estériles
^{238}U	12355. Bq/g U 334. nCi/g U	15.7 TBq 423. Ci	11.7 TBq 317. Ci	3.9 TBq 106. Ci
^{234}U	12483. Bq/g U 337. nCi/g U	18.2 TBq 491. Ci	13.6 TBq 367. Ci	4.6 TBq 124. Ci
^{235}U	569. Bq/g U 15.4 nCi/g U	0.7 TBq 19. Ci	0.5 TBq 14. Ci	0.2 TBq 5. Ci

Tabla 4.2.1 Actividades de los isótopos de uranio involucradas en el funcionamiento de la FUA.

De los datos de la tabla 4.2.1 podemos calcular las concentraciones previsibles de los distintos radionúclidos de interés que se encuentran en los diques. El contenido medio de uranio será de 260 ppm en peso, que equivale a una concentración de ^{238}U de unos 3500 Bq/kg y unos 150 Bq/kg de ^{235}U . Respecto a los

descendientes del ^{238}U , si asumimos que fueron a parar en su totalidad a las escombreras, la concentración de ^{230}Th , ^{226}Ra y ^{210}Pb estará alrededor de 13000 Bq/kg. Estas concentraciones son suficientemente elevadas como para poderlas determinar por espectrometría gamma sin excesivos problemas.

La División de Técnicas Geológicas de la Dirección de Tecnología del CIEMAT, encargada de los estudios para la caracterización física, química y geológica del dique de estériles de la FUA, delegó en nuestro laboratorio la medida de las concentraciones de los descendientes del ^{238}U en algunas de las muestras.

Por necesidades prácticas, para la determinación de ^{226}Ra no era factible realizar la medida de sus descendientes ^{214}Pb y ^{214}Bi , que habría supuesto una espera mínima de tres semanas. Por este motivo se procedió a la determinación directa de ^{226}Ra a partir de su emisión gamma de 186 keV. Los detalles de estos cálculos se presentan en la sección siguiente.

Las emisiones gamma de los radionúclidos de interés de las series radiactivas del ^{238}U y ^{235}U se presentan en la tabla 4.2.2, de la que podemos comentar el pequeño valor de las intensidades de emisión fotónicas de la mayoría de ellos.

4.2.2 Determinación directa de Ra-226 por espectrometría gamma.

La determinación de ^{226}Ra se puede efectuar por métodos indirectos, a través de la medida de alguno de sus descendientes de cortos periodos de desintegración, o bien directos, midiendo las radiaciones emitidas por él en su desintegración. Entre los métodos indirectos podemos señalar:

- Método de emanación del radón, en el que se extrae el ^{222}Rn emanado por la muestra y se mide en una cámara de ionización <EL-DAOUSHY-81>.

SERIE	NUCLIDO	ENERGIA keV	INTENSIDAD %
^{238}U	^{234}Th	63.3	3.81
		92.6	5.41
	^{230}Th	67.7	0.378
	^{226}Ra	186.0	3.51
	^{210}Pb	46.5	4.05
^{235}U	^{235}U	185.7	57.5
		143.8	11.0
		163.4	5.00
	^{231}Pa	27.4	9.52
	^{223}Ra	269.4	13.6
		144.2	3.26

Tabla 4.2.2 Características de los radionúclidos de las series del ^{238}U y ^{235}U emisores gamma determinados en las muestras de estériles.

- Espectrometría gamma de los descendientes del ^{222}Rn (^{214}Pb , $E_\gamma = 352$. keV; ^{214}Bi , $E_\gamma = 609$. keV) <POWERS-78>, <ROESSLER-79>.

Una característica común de los métodos indirectos de determinación de ^{226}Ra es la necesidad de esperar a que se alcance el equilibrio secular con el radón. El periodo de semidesintegración del ^{222}Rn es de 3.8 días, y el tiempo de espera será de tres semanas como mínimo (cinco periodos). Los métodos indirectos presentan una buena sensibilidad para la determinación de ^{226}Ra .

La medida directa de la actividad de ^{226}Ra no requerirá la espera a que se alcance el equilibrio. Las posibilidades de medida son dos:

- Medida de la actividad α , previa separación radioquímica del radio. Para distinguir las contribuciones de otros isótopos naturales de radio también emisores alfa (^{223}Ra y ^{224}Ra) se han de realizar dos medidas de actividad alfa total <MORON-86>, <SUAREZ-87>, o bien proceder a la electrodeposición del radio y medida por espectrometría alfa.

- Medida de la emisión fotónica del ^{226}Ra , que es la técnica que describiremos en este apartado.

La medida de la actividad alfa del radio conlleva la realización de un complejo proceso radioquímico, especialmente laborioso cuando se tratan muestras terreas. La principal ventaja que presenta es su buena sensibilidad cuando no existen interferencias de los isótopos de radio de la serie del ^{232}Th .

4.2.2.1 Interferencia del U-235.

El ^{226}Ra tiene una única emisión fotónica con intensidad apreciable: la línea de 186.0 keV, $Y = 0.0351$. La utilidad de este rayo gamma para la determinación del ^{226}Ra está limitada por la presencia de otras líneas fotónicas de energías próximas debidas a radionúclidos naturales, que se muestran en la tabla 4.2.3.

Las intensidades de emisión fotónicas se tomaron del catálogo de Erdtmann y Soyka <ERDTMANN-79>, a excepción de las correspondientes a ^{235}U y ^{226}Ra , donde se utilizaron reevaluaciones más recientes. En <MARTINEZ-88a> se pueden encontrar los valores de estas intensidades que aparecen en la literatura reciente, pudiéndose observar una importante desviación en las evaluaciones anteriores a 1983.

NUCLIDO	ENERGIA	INTENSIDAD	REFERENCIA
$^{234}\text{Pa}^m$	184.7	$1.2 \cdot 10^{-5}$	<ERDTMANN-79>
^{234}Th	184.8	$4. \cdot 10^{-4}$	<ERDTMANN-79>
^{235}U	185.7	$5.72 \cdot 10^{-1}$	<HELMER-84>
^{230}Th	185.8	$9. \cdot 10^{-5}$	<ERDTMANN-79>
^{234}Pa	186.0	$2.1 \cdot 10^{-4}$	<ERDTMANN-79>
^{226}Ra	186.0	$3.51 \cdot 10^{-2}$	<SCHÖTZIG-83>

Tabla 4.2.3 Emisiones fotónicas de radionúclidos naturales con energías próximas a 186 keV.

La emisión que provocará interferencias apreciables en el pico de 186 keV del ^{226}Ra es la correspondiente al ^{235}U , al tener las otras pequeñas intensidades. La diferencia de energías entre estas dos emisiones gamma, 0.3 keV, es inferior a la resolución energética de los detectores gamma existentes, razón por la cual darán lugar a un único pico en el espectro. Las contribuciones al pico de 186 keV en el caso de un mineral de uranio, en el que el ^{226}Ra está en equilibrio secular con el ^{238}U , son de 57% para ^{226}Ra y 43% para ^{235}U . Adicionalmente contribuye al pico de 186 keV el fondo radiactivo natural. Por tanto, el área neta del pico de 186 keV será la suma de las aportaciones del ^{235}U , ^{226}Ra y del fondo:

$$A_{186} = A_{186}^F + A_{186}^U + A_{186}^{Ra} \quad [4.11]$$

Donde los subíndices se refieren a la energía y los superíndices a la fuente de cada contribución. El valor de la contribución del fondo se determina sencillamente por las medidas de fondo.

La determinación de la contribución del ^{235}U al pico de 186 keV no es tan fácil de calcular, al ser en general desconocido el estado de equilibrio de la serie del uranio en la mayor parte de las muestras naturales. Hay varias formas de

estimar la contribución del ^{235}U utilizando los datos contenidos en el espectro gamma de las muestras: analizando la forma del pico de 186 keV, a través de emisiones secundarias del ^{235}U o indirectamente por la determinación de la actividad del ^{234}Th , descendiente directo del ^{238}U .

La deconvolución del pico compuesto de 186 keV es usada por Paic et al. para obtener la intensidad de cada línea gamma, antes de calcular la relación Ra/U en minerales de uranio <PAIC-82>. Este método requiere picos con muy buena estadística, y no conduce a resultados muy precisos.

Las principales emisiones gamma del ^{235}U (143.7 keV, $Y=0.1101$; 163.4 keV, $Y=0.0504$; 205.3 keV, $Y=0.0496$ <HELMER-84>) tienen intensidades inferiores a la del pico de 186 keV. Este hecho producirá una falta de sensibilidad en la determinación del ^{235}U . Además, la línea más intensa, 143.7 keV, presenta interferencias de otros emisores gamma naturales (^{230}Th 143.6 keV, $Y=0.00048$; ^{223}Ra 144.3 keV, $Y=0.0326$ <REUS-83>).

La otra posibilidad de calcular la contribución del ^{235}U es a partir de los rayos gamma del ^{234}Th , que ha sido utilizada frecuentemente en la literatura para la determinación de uranio <MUBARAKMAND-77>, <ROESSLER-79>, <ROY-83> y del cociente Ra/U <CHOUAK-78>. Este radionúclido es el descendiente inmediato del ^{238}U , y debido a su relativamente corto periodo de semidesintegración, $T_{1/2}=24.1$ días, estará en equilibrio con su padre en la mayoría de las muestras terreas. Aparte del equilibrio entre ^{238}U y ^{234}Th , hay que suponer que la composición isotópica de uranio en la muestra es conocida para calcular la contribución de ^{235}U .

El espectro de ^{234}Th presenta dos picos, en 63.3 keV, $Y=0.0381$ y el doblete 92.4 + 92.8 keV, $Y=0.0557$ <REUS-83>. Aunque la probabilidad de emisión del pico de 92.6 keV es mayor que la del pico de 63.3 keV, la presencia de rayos gamma y X de la desintegración de varios miembros de las series radiactivas

naturales complican el análisis de este pico <LAU-82>.

4.2.2.2 Cálculo de la actividad de Ra-226.

A partir de la fórmula [4.11] del área neta del pico de 186 keV se obtiene la actividad de ^{226}Ra aplicando la ecuación:

$$A_C(^{226}\text{Ra}) = \frac{A_{186} - A_{186}^F - A_{186}^U}{T \cdot M \cdot \text{eff} \cdot Y} \text{ (Bq/u)} \quad [4.12]$$

donde T es el tiempo de medida, M la masa de la muestra, eff la eficiencia para 186 keV e Y la intensidad de emisión fotónica de la línea de 186 keV del ^{226}Ra . La contribución del ^{235}U al pico de 186 keV se determina aplicando:

A partir del pico de 144 keV:

$$A_{186}^U = A_{144}^U \cdot \frac{\text{eff}_{186} \cdot Y_{186}^U}{\text{eff}_{144} \cdot Y_{144}^U} \text{ (cuentas)} \quad [4.13]$$

A partir del pico de 63 keV:

$$A_{186}^U = A_{63} \cdot \frac{\text{eff}_{186} \cdot Y_{186}^U}{\text{eff}_{63} \cdot Y_{63}} \cdot 0.046 \text{ (cuentas)} \quad [4.14]$$

La notación empleada sigue el criterio aplicado en la fórmula [4.11]: los subíndices indican la energía en cuestión y los superíndices la fuente del término en el caso de existir más de una. El término A_{144}^U se refiere a la contribución del ^{235}U al área neta del pico de 144 keV, y debe ser calculado a partir de otras emisiones gamma del ^{223}Ra o suponiendo que se encuentran en equilibrio. El factor 0.046 es el cociente entre las actividades

específicas de ^{235}U y ^{238}U supuesta la abundancia isotópica natural.

Debido a su mejor sensibilidad, A_{186}^{U} se calculará a partir de los datos del pico de 63 keV del ^{234}Th , mientras que el pico de 144 keV se utilizará, cuando aparezca en el espectro, para comprobar el estado de equilibrio entre ^{234}Th y ^{238}U . Un estudio más detallado sobre la sensibilidad de detección de estos dos picos se encuentra en <MARTINEZ-88a,-89,-91b>.

En aquellas situaciones en las que no se detecte el pico de 63 keV del ^{234}Th no se podrá evaluar A_{186}^{U} . En este punto se pueden efectuar tres elecciones:

- Suponer que no hay uranio en la muestra y por tanto $A_{186}^{\text{U}} = 0$. La aplicación de la fórmula [4.12] conducirá a una sobrestimación de la actividad de ^{226}Ra .

- Suponer que la concentración de uranio es justamente la mínima concentración detectable, MCD, calculada de la mínima actividad detectable, MAD, de ^{234}Th , siguiendo los criterios de Currie <CURRIE-68>. En este caso la actividad de ^{226}Ra estará infravalorada.

- Determinar el contenido de uranio de la muestra por un método químico alternativo más sensible, como la fluorimetría.

La mínima concentración detectable de uranio para una medida de 24 horas varía entre 7 y 0.4 ppm U, dependiendo de la geometría de recuento. Un parámetro importante para estimar la capacidad y aplicabilidad de este método es la sobrestimación de la actividad de ^{226}Ra debida al uranio no detectado. Suponiendo que la concentración de uranio en la muestra es igual a la mínima concentración detectable (con un nivel de confianza del 95%) se puede calcular fácilmente la contribución del ^{235}U al pico de 186 keV, y de aquí la sobrestimación en la actividad de ^{226}Ra , que sería una medida del máximo error en que se incurriría. Los

resultados de estos cálculos, para las tres geometrías descritas en el apartado 3.4.3.2, se muestran en la figura 4.2.2.

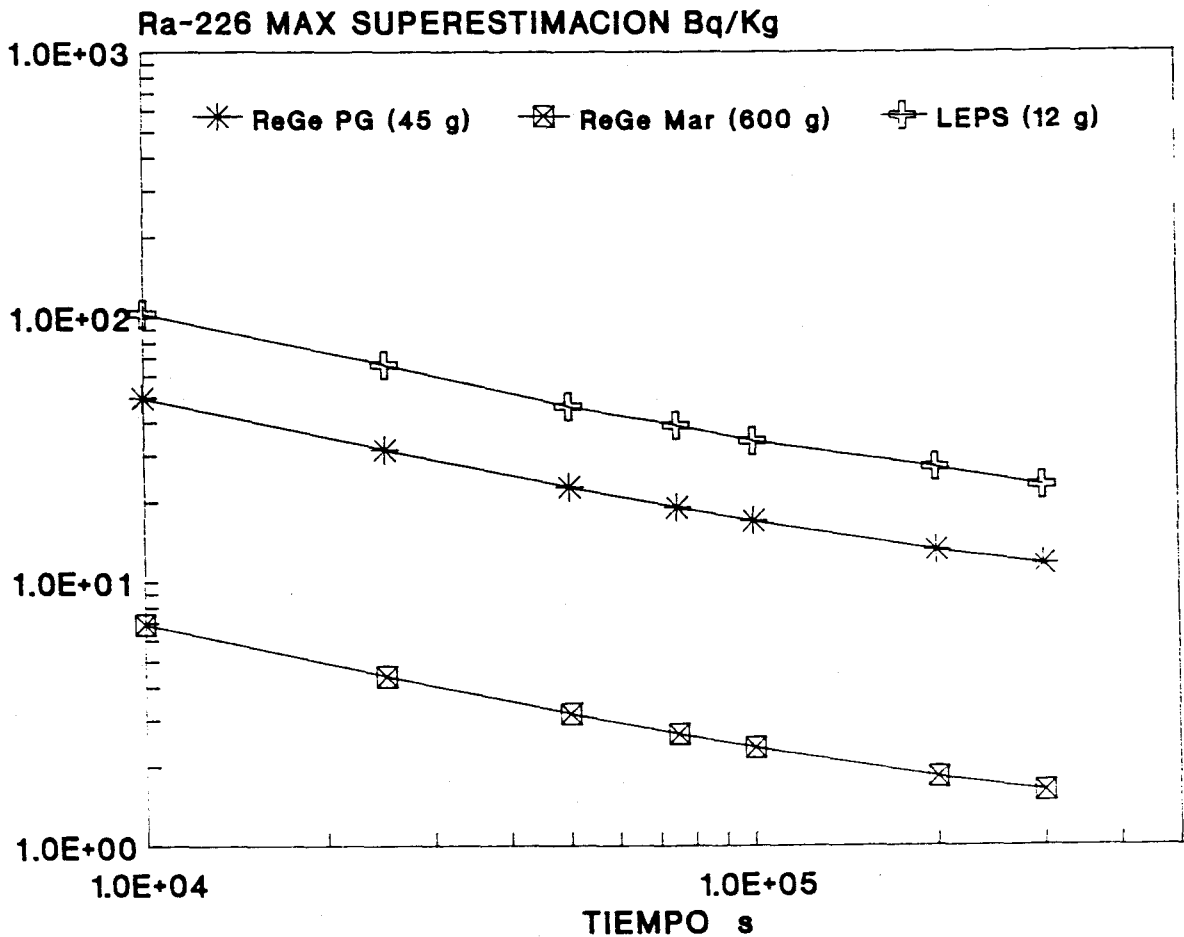


Figura 4.2.2 Máxima sobrestimación en la concentración de ^{226}Ra debida al ^{235}U no detectado en función del tiempo de medida.

Los valores de la actividad extra de ^{226}Ra varían entre 5 y 100 Bq/kg, dependiendo de la geometría de medida (y por tanto de la cantidad disponible de muestra). La concentración típica de ^{226}Ra en suelos está comprendida entre 10 y 100 Bq/kg; por esta

razón, la medida directa de ^{226}Ra por espectrometría gamma no es aplicable a cualquier tipo de muestra, al depender la reducción de la sobrestimación de la actividad de ^{226}Ra de la cantidad de muestra disponible.

Por otra parte, en aquellas situaciones en las que el contenido de ^{226}Ra sea presumiblemente elevado, como en zonas donde se manipulan minerales de uranio, las concentraciones de ^{226}Ra son suficientemente elevadas (entre 10^2 y 10^4 Bq/kg) como para hacer despreciable la posible sobrestimación.

4.2.2.3 Sensibilidad del método.

La sensibilidad del método para la determinación de ^{226}Ra se calcula a partir de la mínima actividad detectable, siguiendo, como en el apartado 2.2.2.4, la formulación de Currie. En este caso, sin embargo, hemos de añadir a la expresión del nivel crítico de detectabilidad, L_C , un término correspondiente a la interferencia del ^{235}U , que puede considerarse como una fuente más de fondo:

$$L_C^{Ra} = k \sqrt{B_{186} + \sigma_B^2 + I_{186} + \sigma_I^2 + A_{186}^U + \sigma_A^2} \quad [4.15]$$

donde se sigue utilizando la nomenclatura previa.

La mínima actividad detectable de ^{226}Ra depende del contenido de uranio de la muestra, como es de esperar: cuanto mayor sea éste, peor será la sensibilidad para el ^{226}Ra . Este hecho se ilustra en la figura 4.2.3, en la que se representa la mínima actividad detectable de ^{226}Ra para una medida de 20 horas en función del contenido de uranio para las tres geometrías estudiadas. Se puede observar que para concentraciones de uranio por debajo de 20 ppm aproximadamente la mínima actividad detectable de ^{226}Ra permanece constante, mientras que a partir de este punto la MAD de ^{226}Ra aumenta progresivamente.

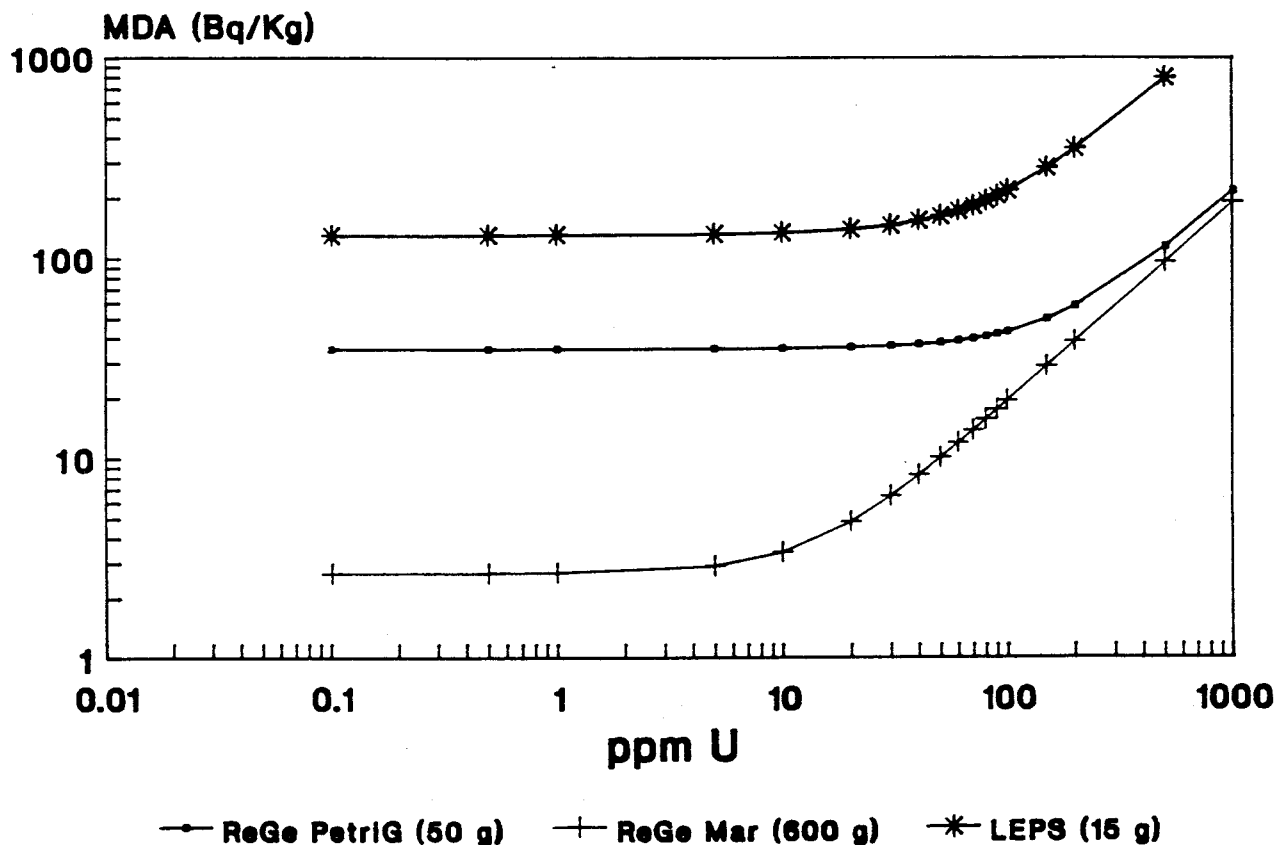


Figura 4.2.3 Variación de la mínima actividad detectable de ^{226}Ra para una medida de 20 horas con el contenido de uranio de la muestra.

La mínima actividad detectable de ^{226}Ra en la situación más favorable (bajo contenido de uranio en la muestra) es 5, 30 y 120 Bq/kg para las geometrías ReGe Marinelli, ReGe Petri y LEPS plancheta de 12 g respectivamente.

4.2.2.4 Validación del método.

Para comprobar la bondad del método se han realizado medidas de dos minerales de uranio con riquezas conocidas. Estas muestras fueron preparadas en la División de Química de la antigua Junta de Energía Nuclear para su utilización como patrones por la OIEA.

Además de los minerales de uranio, se midió una muestra de sedimentos, cuyo contenido de ^{226}Ra estaba certificado por la OIEA. En la tabla 4.2.4 se presentan las medidas realizadas de las muestras patrones en las diferentes geometrías, junto con el valor recomendado de la concentración de ^{226}Ra . En algunos casos, al no haber suficiente cantidad de muestra no se pudieron realizar las medidas en las geometrías marinelli (minerales 1 y 2) y petri (mineral 2).

Los resultados obtenidos están en buen acuerdo con los valores recomendados de ^{226}Ra en el caso de los minerales. En estas muestras las actividades de radio se calcularon a partir de las concentraciones de uranio, suponiendo la existencia de equilibrio secular.

PATRON	V.CERTIF.	LEPS 12 g	ReGe PG	ReGe Mar.
SOIL-6	80. ± 12.	-	80.± 18.	72.9 ± 5.2
MINERAL 1	9750. #	11250.± 620.	9470.± 680.	-
Carretona		10300.±1000.	10100.±1100.	-
MINERAL 2	2090. #	2100.± 340.	-	-
Fraga		2300.± 210.	-	-

Tabla 4.2.4 Resultados obtenidos en la medida de ^{226}Ra en las muestras estándar. Las actividades están expresadas en Bq/kg, y los errores de las muestras medidas corresponden a dos sigmas. # No se indica la incertidumbre en el contenido de uranio.

Los resultados obtenidos en la medida del sedimento SOIL-6 están dentro de los valores certificados, si bien es preciso señalar la mayor incertidumbre del resultado obtenido en

la geometría Petri, debido a su peor sensibilidad. Esta muestra no se midió en el sistema LEPS por estar la concentración de ^{226}Ra por debajo del límite de detección.

4.2.2.5 Discusión.

El método de medida directa de ^{226}Ra por espectrometría gamma que hemos presentado reúne una serie de ventajas, entre las que podemos destacar:

- Rapidez: La determinación de ^{226}Ra puede efectuarse con una única medida, sin necesidad de esperar a que se establezca el equilibrio con sus descendientes.

- Carácter multielemental: El análisis de los espectros gamma permite la determinación de otros radionúclidos presentes en la muestra. De especial interés son ^{234}Th , ^{230}Th y ^{210}Pb , a partir de cuyas concentraciones es posible determinar el estado de equilibrio existente en la serie del ^{238}U .

- Ausencia de tratamiento químico: Las muestras a medir no requieren más manipulación que la homogeneización y el acondicionamiento a la geometría de medida, evitándose el tedioso proceso radioquímico.

- Operatividad: El análisis de los espectros gamma y la sustracción de la contribución de ^{235}U se puede efectuar con programas de cálculo con ordenadores.

- Carácter no destructivo: Al no destruirse la muestra analizada, ésta puede ser sometida a posterior tratamiento radioquímico si se considera necesario.

Por otra parte, existen varios factores que dificultan la aplicación de este método, entre los que destacamos:

- Baja intensidad de emisión fotónica del Ra-226:

La intensidad de emisión de la línea de 186 keV del ^{226}Ra es 0.0351, valor bajo que hace más que aconsejable el empleo de detectores de alta eficiencia, y que reduce la sensibilidad.

- Interferencia en la línea de 186 keV: El ^{235}U emite fotones con una energía muy próxima a los del ^{226}Ra . Al ser también un radionúclido natural habrá que sustraer su contribución antes de calcular la actividad de radio.

- Sensibilidad: Como consecuencia de los dos puntos anteriores se produce una pérdida de sensibilidad en la detección de ^{226}Ra , que se acentúa al aumentar la concentración de uranio de la muestra.

- Equilibrio entre Th-234 y U-238: El estado de equilibrio entre ^{234}Th y ^{238}U , fundamental para la aplicación del método, está alcanzado presumiblemente en muestras terreas; en otros tipos de muestras, como filtros atmosféricos, aguas o materiales biológicos, el estado de equilibrio es desconocido, por lo que habrá que utilizar las emisiones secundarias del ^{235}U para realizar la sustracción.

La aplicación de este método está especialmente favorecida en muestras con altos contenidos de ^{226}Ra , como minerales de uranio y sus residuos.

4.2.3 Análisis espectrométrico de los estériles.

Los análisis por espectrometría gamma de estériles de la fabricación de uranio se pueden caracterizar por la moderadamente alta actividad de las muestras y por la presencia de numerosas líneas fotónicas. Gracias a la alta actividad será posible la determinación de elementos de la serie del ^{235}U .

Las emisiones gamma de interés tienen energías por debajo de los 300 keV; esto unido a la moderadamente alta actividad de las muestras y a la presencia de gran número de emisiones nos hicieron optar por medir las muestras de estériles en el sistema LEPS, una de cuyas características es la excelente resolución en energías.

Las muestras medidas se engloban en dos grupos; en el primero se estudia la distribución de los radionúclidos en función del tamaño de las partículas, mientras que en el segundo se estudia la variación de las concentraciones de actividad en función de la profundidad en el dique.

4.2.3.1 Distribución de actividades según granulometría.

La muestra que se midió fue tomada de un sondeo del dique de estériles, en su zona central, lejos de las paredes de contención, a una profundidad de 13 metros. La muestra recogida se separó en función del diámetro de las partículas que la componían en cuatro grupos con diámetros 1000-500, 500-125, 125-63 y $< 63 \mu\text{m}$. Los resultados obtenidos se muestran en la tabla 4.2.5, en el que las actividades se dan en bequerelios por gramo y las incertidumbres corresponden a dos sigmas.

Las concentraciones de los radionúclidos pertenecientes a la serie del ^{238}U se representan en función del diámetro de partícula en la figura 4.2.4. Dado el corto periodo de

semidesintegración del ^{234}Th , 24.1 días, este núclido se encontrará en equilibrio secular con su predecesor, ^{238}U , y nos servirá para indicarnos la concentración de uranio en la muestra. Para corroborar esta afirmación se determinó el contenido medio de uranio en la muestra antes del desmuestre, por fluorimetría, resultando un valor de 169 ppm de uranio en peso que corresponde a una actividad de 2.09 Bq/g; este valor está en concordancia con la actividad media de ^{234}Th en las cuatro muestras, 1.95 ± 0.41 Bq/g.

	TAMAÑO DE LAS PARTICULAS (μm)			
	1000-500	500-125	125-63	< 63
^{234}Th	2.35 \pm 0.28	2.19 \pm 0.26	1.83 \pm 0.22	1.43 \pm 0.12
^{230}Th	14.7 \pm 1.2	18.6 \pm 1.5	17.5 \pm 1.4	15.9 \pm 0.9
^{226}Ra	27.3 \pm 2.0	28.9 \pm 2.0	27.2 \pm 2.0	21.9 \pm 1.5
^{210}Pb	19.8 \pm 1.3	24.1 \pm 0.8	22.3 \pm 0.8	20.5 \pm 0.7
^{231}Pa	1.3 \pm 0.2	1.4 \pm 0.1	1.4 \pm 0.2	1.4 \pm 0.2
^{223}Ra	1.0 \pm 0.1	1.3 \pm 0.2	1.5 \pm 0.2	0.82 \pm 0.09

Tabla 4.2.5 Distribución de la actividad según granulometría. Las actividades están expresadas en Bq/g y la incertidumbre asociada corresponde a dos sigmas.

El hecho más notable que se puede apreciar en la tabla 4.2.5 y en la figura 4.2.4 es el estado de desequilibrio existente entre el ^{234}Th , es decir, el ^{238}U , y el resto de sus descendientes. Las actividades de ^{230}Th , ^{226}Ra y ^{210}Pb son, a primera vista, equivalentes. Esta primera conclusión es lógica, sin más que atender al origen de las muestras.

Respecto a las diferentes actividades de los descendientes del ^{238}U , indicativo de la no existencia de

equilibrio entre ellos, se puede observar que el radionúclido con mayor actividad es el ^{226}Ra , seguido del ^{210}Pb y ^{230}Th . En la tabla 4.2.6 se presentan los valores del cociente de actividades de los descendientes del uranio y el ^{226}Ra , que ilustra la diferencia de actividades encontrada; estos mismos datos se representan gráficamente en la figura 4.2.5.

La razón para tomar el ^{226}Ra como base para el cálculo de los cocientes es su mayor actividad, motivada por su ausencia casi total de los concentrados de uranio (se estima que el radio contribuye entre el 0.02 y 0.2 % a la actividad total de los concentrados). La gran insolubilidad del radio en medio sulfúrico es la responsable de este comportamiento.

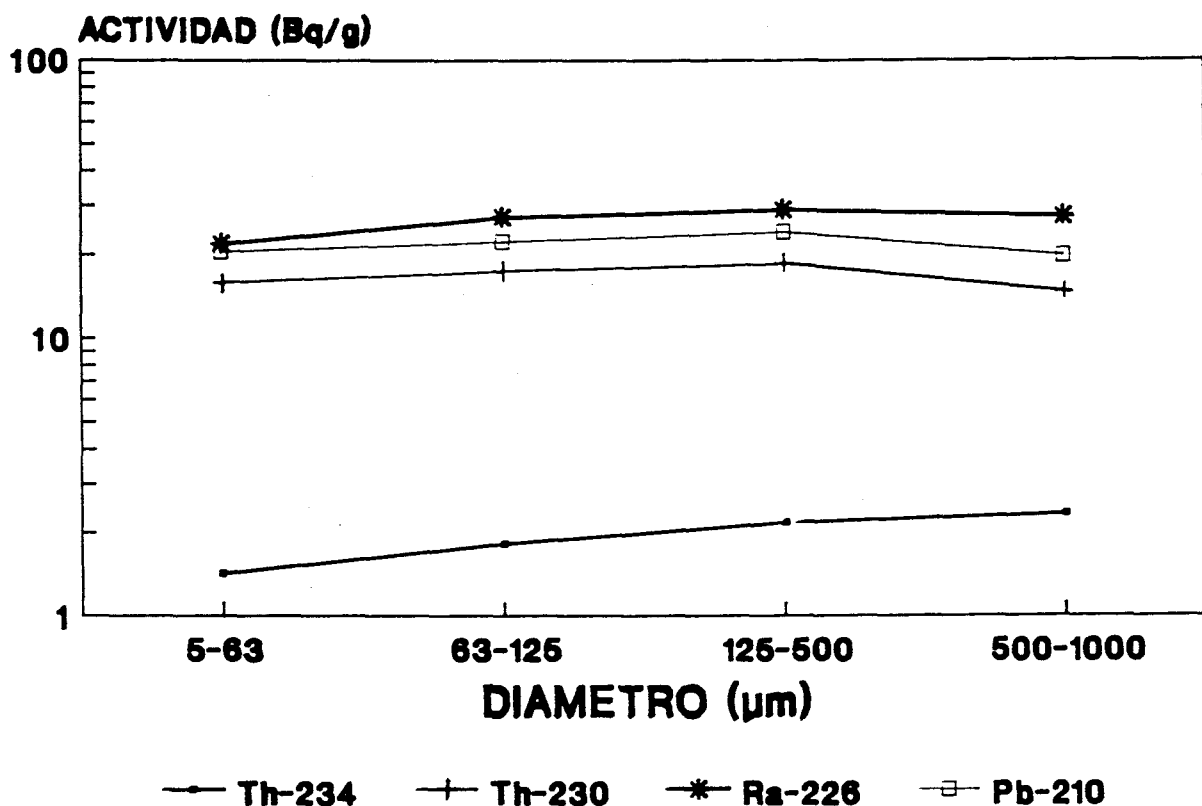


Figura 4.2.4 Distribución por granulometría de los miembros de la serie del ^{238}U .

TAMAÑO DE LAS PARTICULAS (μm)

	1000-500	500-125	125-63	63-5	MEDIA
$^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$	0.086 ± 0.012	0.076 ± 0.010	0.067 ± 0.009	0.065 ± 0.007	0.074 ± 0.010
$^{230}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$	0.538 ± 0.059	0.644 ± 0.068	0.643 ± 0.070	0.726 ± 0.065	0.638 ± 0.077
$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	0.725 ± 0.071	0.834 ± 0.064	0.820 ± 0.067	0.936 ± 0.072	0.829 ± 0.086

Tabla 4.2.6 Relación entre las actividades de ^{234}Th , ^{230}Th y ^{210}Pb y la de ^{226}Ra en función de la granulometría.

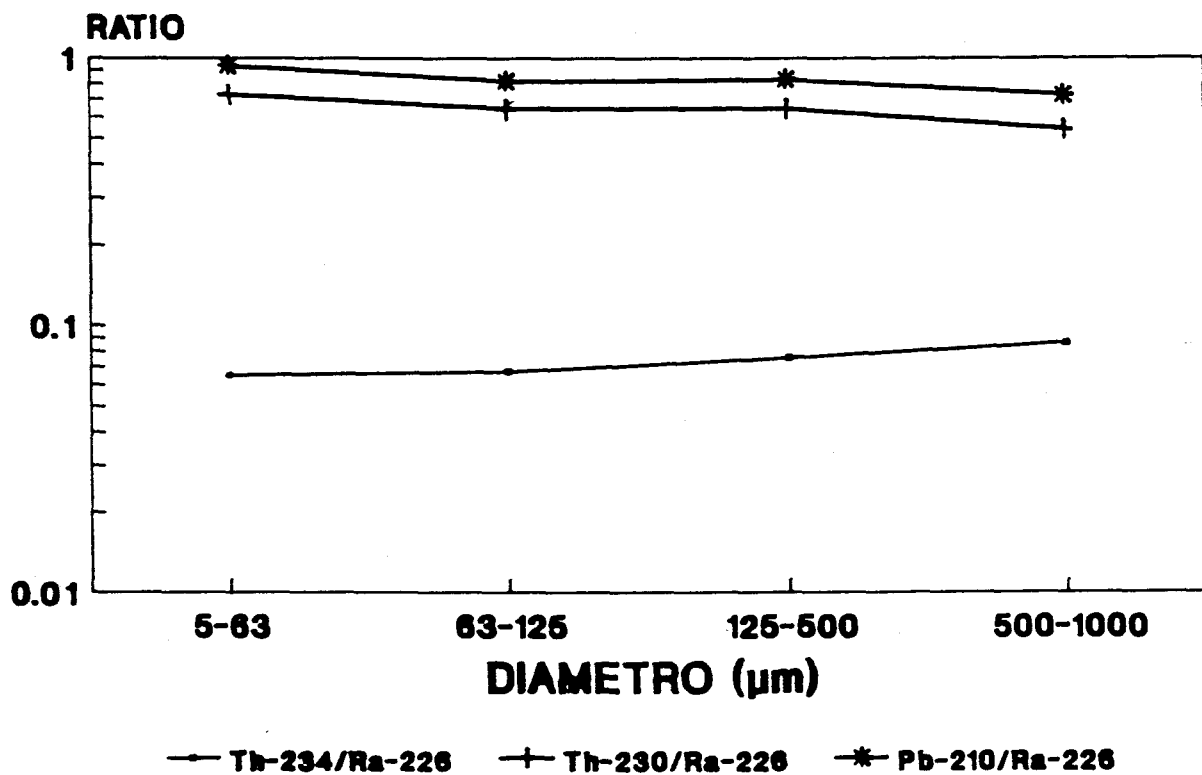


Figura 4.2.5 Variación del cociente de actividades respecto al ^{226}Ra según granulometría.

La concentración media de ^{226}Ra en las cuatro muestras medidas es de 26.3 ± 3.1 Bq/g. Si suponemos que la totalidad del radio presente en los minerales ha ido a parar a los estériles, la concentración de radio nos indicará la de los minerales de uranio. Haciendo este cálculo se obtiene un valor de la riqueza del 2.1 ± 0.3 por mil en peso de uranio (equivalente a 2.5 ± 0.4 por mil en U_3O_8). La concentración de uranio obtenida es el doble del valor medio de la riqueza de los minerales procesados en la FUA.

Considerando que la ley de los minerales tratados en la FUA era relativamente constante, y la realización de mezclas con los minerales antes de su tratamiento para homogeneizar su contenido en uranio, la actividad de ^{226}Ra parece ser excesivamente elevada. Cuando se presenten los resultados del segundo conjunto de muestras, apartado 4.2.3.2, volveremos sobre este problema.

El valor medio del cociente de actividades $^{230}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ y $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$, 0.638 ± 0.077 y 0.829 ± 0.086 respectivamente, indica una pérdida de ^{230}Th en torno al 35 % y de ^{210}Pb del 15 % en estas muestras. Respecto al torio, en la lixiviación ácida de los minerales se estima que un 50 % del mismo se solubiliza, si bien después de la recuperación del uranio, ya sea por cambio de ión o por extracción, es separado, refiriéndose valores de ^{230}Th en los concentrados por debajo del 5 % del total existente en el mineral. El resultado parece indicar una falta de eficiencia en el proceso de neutralización y precipitación de la solución gastada de uranio.

En el caso del ^{210}Pb , alrededor del 20 % es solubilizado durante la lixiviación ácida, y, como en el caso anterior, parece que la precipitación de los efluentes gastados no fue totalmente eficiente. Adicionalmente, la emanación de ^{222}Rn de los diques puede ser responsable de una parte del ^{210}Pb que "falta" de los estériles.

Los valores del cociente de actividades $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ aumentan ligeramente con el diámetro de las partículas, indicando la mayor recuperación de uranio en las partículas más pequeñas. Este resultado es lógico, al verse favorecida la lixiviación cuando disminuye el tamaño de las partículas.

El comportamiento de los cocientes de actividades $^{230}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ y $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ es justamente el inverso: aumentan ligeramente al disminuir el tamaño de partícula. Este hecho no es consistente con el razonamiento anterior de que la solubilización de estos radionúclidos durante la lixiviación era

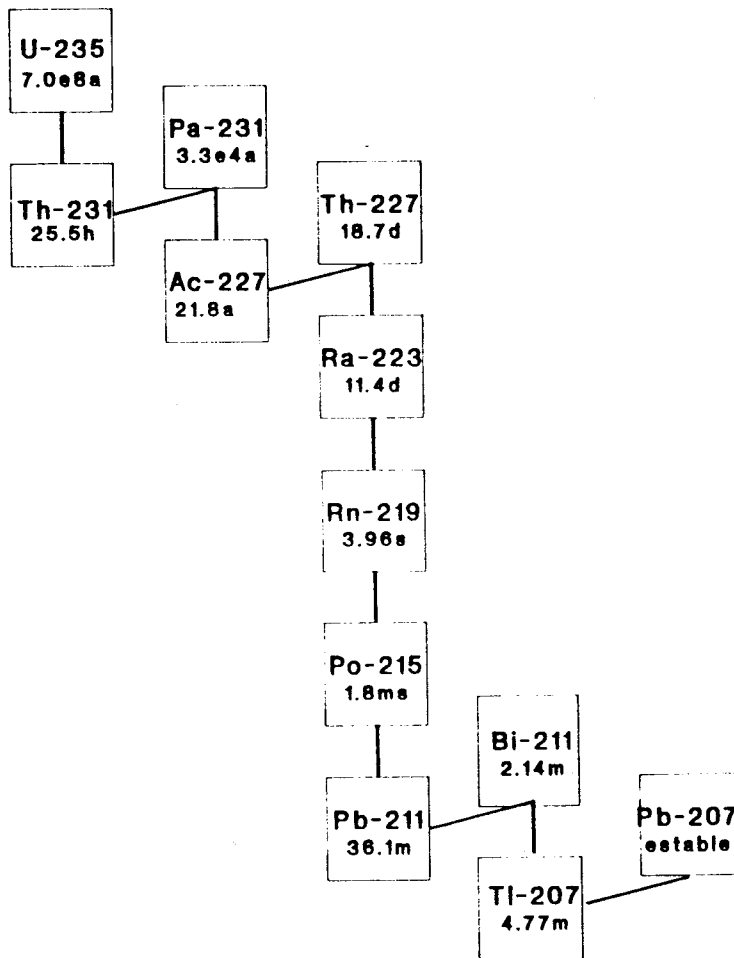


Figura 4.2.6 Diagrama de la serie radiactiva del ^{235}U .

la responsable de la diferencia de actividades respecto al ^{226}Ra , aunque hay que considerar que las desviaciones cuadráticas medias son compatibles con los errores de las determinaciones experimentales.

En las dos últimas filas de la tabla 4.2.5 se muestran las actividades de dos miembros de la serie del ^{235}U , en concreto ^{231}Pa y ^{223}Ra . A la vista del esquema de desintegración de la serie del ^{235}U , figura 4.2.6, se observa que el ^{231}Pa es el primer descendiente de la serie con un periodo de desintegración elevado, $T_{1/2} = 3.276 \cdot 10^4$ años. Por su parte, el ^{223}Ra , $T_{1/2} = 11.343$ días, se encontrará en equilibrio secular con el ^{227}Ac , $T_{1/2} = 21.77$ años, descendiente inmediato del ^{231}Pa .

Las actividades medidas en las cuatro muestras, que se representan en la figura 4.2.7, son inferiores a las correspondientes a los radionúclidos de la serie del ^{238}U , y las incertidumbres relativas son mayores. Los dos núclidos señalados parecen estar en equilibrio, a excepción de la muestra más fina.

En la tabla 4.2.7 se muestran los cocientes de actividades $^{235}\text{U}/^{231}\text{Pa}$, $^{235}\text{U}/^{223}\text{Ra}$ y $^{223}\text{Ra}/^{231}\text{Pa}$ para las cuatro muestras medidas. Las actividades de ^{235}U se calcularon a partir de las de ^{234}Th , suponiendo que la composición isotópica del uranio es la natural. Al igual que ocurría en la serie del ^{238}U , se observa la pérdida de equilibrio entre el isótopo de uranio y sus descendientes.

TAMAÑO DE LAS PARTICULAS (μm)

	1000-500	500-125	125-63	63-5	MEDIA
$^{235}\text{U}/^{231}\text{Pa}$	0.083 ± 0.016	0.072 ± 0.010	0.060 ± 0.011	0.047 ± 0.008	0.066 ± 0.016
$^{235}\text{U}/^{223}\text{Ra}$	0.108 ± 0.017	0.078 ± 0.015	0.056 ± 0.010	0.080 ± 0.011	0.081 ± 0.021
$^{223}\text{Ra}/^{231}\text{Pa}$	0.77 ± 0.14	0.93 ± 0.16	1.07 ± 0.21	0.59 ± 0.11	0.84 ± 0.21

Tabla 4.2.7 Cociente de actividades $^{235}\text{U}/^{231}\text{Pa}$, $^{235}\text{U}/^{223}\text{Ra}$ y $^{223}\text{Ra}/^{231}\text{Pa}$ en función de la granulometría.

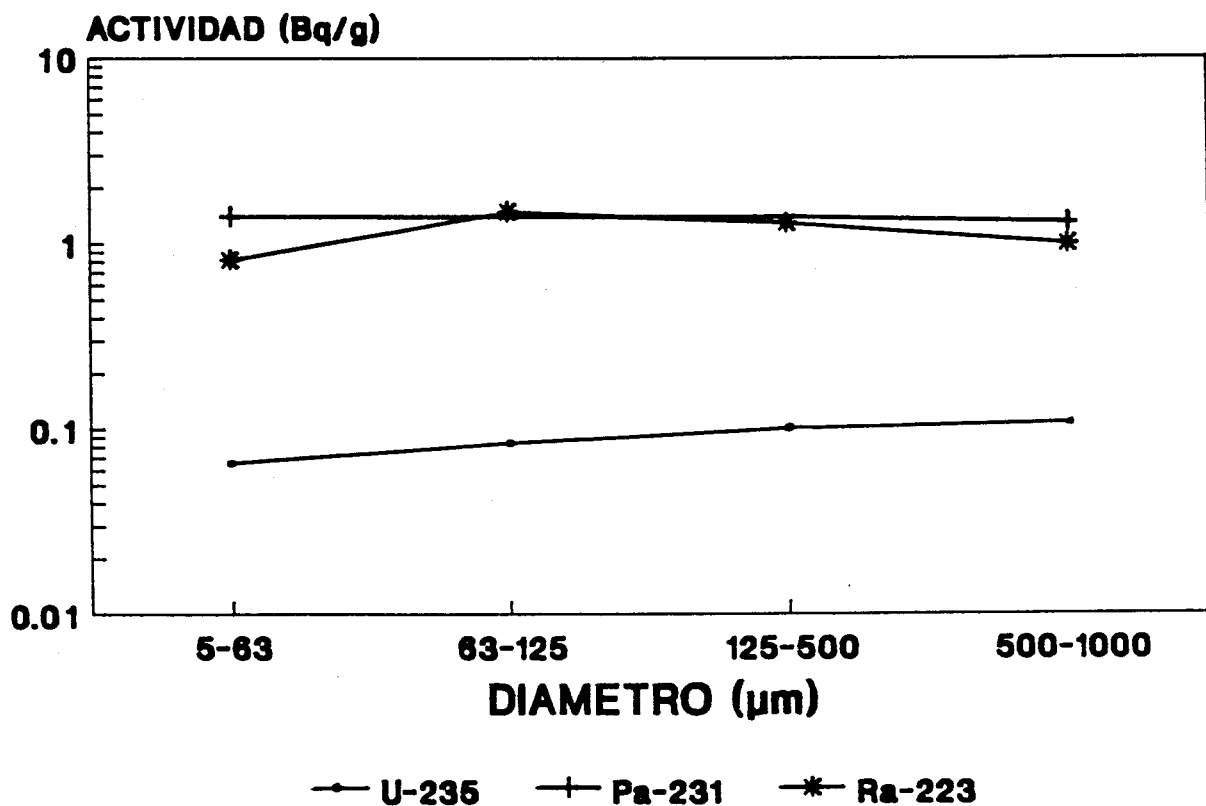


Figura 4.2.7 Variación de la actividad de ^{235}U , ^{231}Pa y ^{223}Ra en función de la granulometría.

La relación entre las actividades medias $^{226}\text{Ra}/^{231}\text{Pa}$ y $^{226}\text{Ra}/^{223}\text{Ra}$, 19.1 ± 2.4 y 22.7 ± 6.4 respectivamente, son compatibles con la relación de actividades $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ en muestras naturales, 21.7, hecho que da coherencia al conjunto de actividades medido y parece indicar que la totalidad de ^{231}Pa y ^{223}Ra contenido en los minerales pasa a las escombreras. En la literatura no se encontraron valores sobre la retención de estos radionúclidos en los concentrados de uranio, debido a su menor importancia relativa.

Los valores medios de los cocientes de actividades $^{235}\text{U}/^{231}\text{Pa}$ y $^{235}\text{U}/^{223}\text{Ra}$ son compatibles entre sí, en parte debido a las elevadas incertidumbres. El valor medio de los ocho cocientes, 0.073 ± 0.019 , coincide con el valor medio de los cocientes $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$, 0.074 ± 0.010 . Esta coincidencia parece indicar también que la mayor parte del ^{231}Pa pasa a los estériles. Al igual que sucedía en la serie del ^{238}U , la relación entre ^{231}Pa y ^{235}U disminuye con el tamaño de partícula.

Respecto a los cocientes $^{223}\text{Ra}/^{231}\text{Pa}$, su valor medio muestra una desviación estándar elevada, y es compatible con la existencia de equilibrio entre ambos, más aún si se prescinde del resultado correspondiente a la fracción más fina, que presenta una actividad de ^{223}Ra bastante baja.

4.2.3.2 Distribución de actividades con la profundidad.

Las muestras analizadas en esta sección fueron recogidas en el mismo sondeo que las anteriores, en la parte más antigua del dique, que tiene una altura de 20 metros sobre la superficie. Del testigo extraído se prepararon cinco muestras correspondientes a los intervalos de profundidad que se indican en la tabla 4.2.8, en la que aparecen también las actividades de los radionúclidos estudiados en la sección anterior.

PROFUNDIDAD (m)

	1.4-2.0	4.4-5.0	8.4-9.0	12.4-13.0	16.4- 17.0
²³⁴ Th	0.60±0.06	0.93±0.11	1.58±0.32	1.66±0.32	1.69±0.16
²³⁰ Th	5.3 ±0.8	9.0 ±1.6	15.6 ±2.0	17.4 ±2.3	21.9 ±2.1
²²⁶ Ra	9.0 ±0.4	13.3 ±0.7	24.6 ±1.1	25.8 ±1.2	26.7 ±1.2
²¹⁰ Pb	9.6 ±0.3	13.7 ±0.5	24.6 ±0.9	23.6 ±0.9	24.4 ±0.9
²³¹ Pa	0.64±0.04	0.97±0.08	1.5 ±0.1	1.4 ±0.1	1.5 ±0.1
²²³ Ra	0.35±0.13	0.65±0.23	0.94±0.28	1.0 ±0.15	1.3 ±0.3

Tabla 4.2.8 Distribución de la actividad en función de la profundidad en el dique de estériles. Las actividades están expresadas en Bq/g y la incertidumbre asociada corresponde a dos sigmas.

Al igual que en las muestras pertenecientes a la sección 4.2.3.1, se observa un desequilibrio entre las concentraciones de ²³⁸U y ²³⁵U y las de sus descendientes. En la figura 4.2.8 se representan las concentraciones de los radionúclidos medidos de la serie del ²³⁸U, donde se puede apreciar claramente este hecho. Otra característica que se puede observar en la figura 4.2.8 es el aumento de las concentraciones de todos los radionúclidos con la profundidad.

Es más conveniente para hacer los razonamientos el estudio de los cocientes de actividades, como se hizo en la sección anterior. En la tabla 4.2.9 se presentan estos valores para la serie del ²³⁸U, normalizados a la actividad de ²²⁶Ra. Las concentraciones de ²²⁶Ra vuelven a ser las más elevadas.

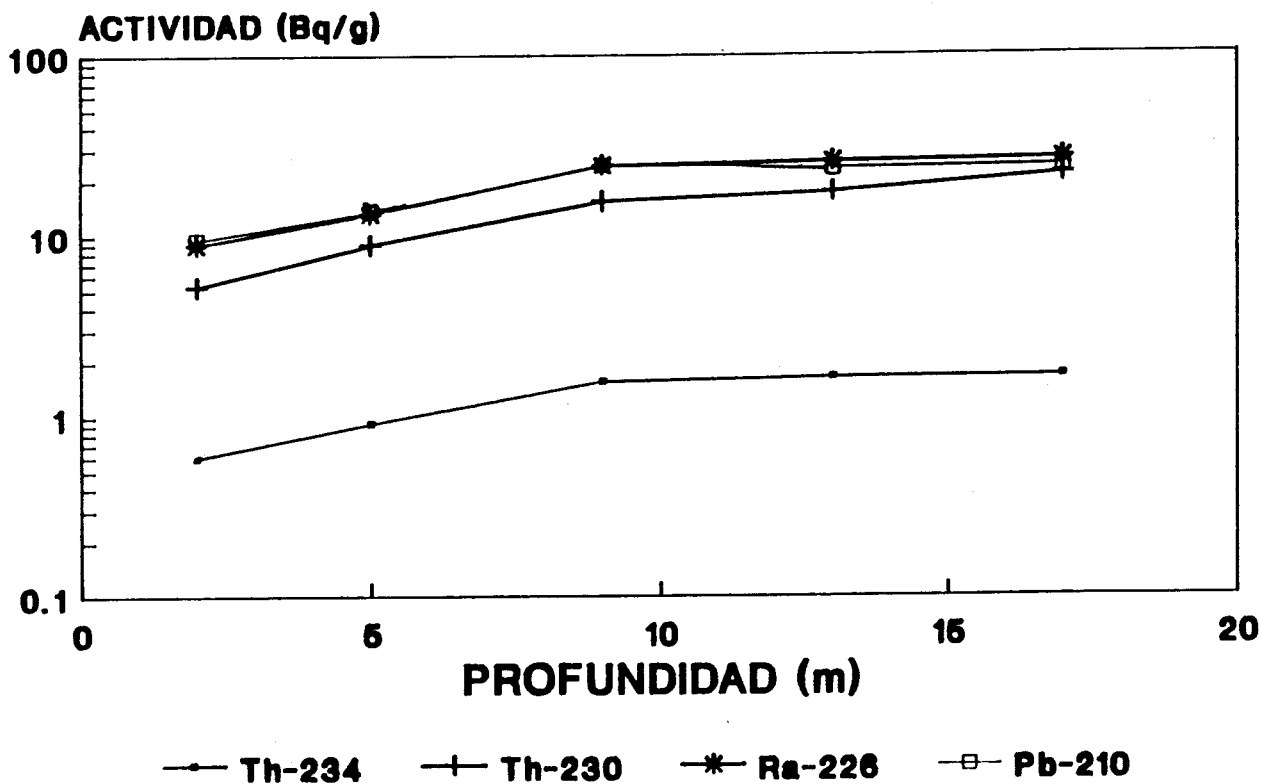


Figura 4.2.8 Concentración de los radionúclidos de la serie del ^{238}U en función de la profundidad.

El aumento de la actividad con la profundidad es suave en el caso de ^{234}Th y ^{230}Th , mientras que ^{226}Ra y ^{210}Pb muestran un comportamiento diferenciado: el crecimiento es rápido hasta los nueve metros; a partir de los 9 m se mantienen las concentraciones prácticamente constantes.

Los valores de la desviación estándar de las medias de los cocientes de actividades son muy similares a los errores experimentales; este hecho parece poner de manifiesto que las razones entre las actividades permanecen prácticamente constantes y no varían significativamente con la profundidad. De aquí se puede concluir que el aumento de la actividad con la profundidad no es debido a una mejora en el proceso de concentración de

uranio. En efecto, si tal fuese el caso se debería observar un aumento en la concentración de uranio, léase ^{234}Th , pero no en la de sus descendientes, al tener los minerales tratados durante el funcionamiento de la FUA parecidas riquezas.

PROFUNDIDAD	$^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$	$^{230}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$
1.4- 2.0	0.067 ± 0.007	0.589 ± 0.093	1.067 ± 0.093
4.4- 5.0	0.070 ± 0.009	0.676 ± 0.13	1.028 ± 0.067
8.4- 9.0	0.064 ± 0.013	0.634 ± 0.086	1.000 ± 0.057
12.4-13.0	0.064 ± 0.013	0.674 ± 0.095	0.915 ± 0.054
16.4-17.0	0.063 ± 0.007	0.820 ± 0.087	0.914 ± 0.052
V. MEDIO	0.066 ± 0.003	0.679 ± 0.087	0.985 ± 0.068

Tabla 4.2.9 Variación de los cocientes de actividades $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$, $^{230}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ y $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ en función de la profundidad.

La migración de los radionúclidos es otra causa posible para explicar el aumento de actividad con la profundidad. En este caso, cabría pensar en un comportamiento distinto entre uranio y torio por una parte y radio y plomo por otra. Las características químicas y geológicas de los diques de estériles es sumamente compleja, y debería dar la base para explicar el comportamiento observado.

Es destacable la similitud de los valores encontrados en las relaciones de actividades entre los dos conjuntos de muestras. El valor más discrepante es el de la relación $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$, que resulta ser mayor en el segundo conjunto de muestras. Este hecho puede ser debido a que estas últimas muestras son más profundas y antiguas, y la emanación de radón debe ser mucho más

baja que en las muestras separadas por granulometría, resultando en una menor cantidad de ^{210}Pb que escapa a la atmósfera y en un restablecimiento parcial del equilibrio entre ^{226}Ra y ^{210}Pb .

4.2.3.3 Discusión.

Para la comprensión de los resultados obtenidos en el análisis de las muestras presentadas es preciso conocer bien el funcionamiento del dique de estériles.

Las muestras analizadas fueron recogidas del mismo sondeo, y la que se separó por tamaños de partículas correspondía a una profundidad de 13 metros. Los valores medidos de las concentraciones de los diferentes radionúclidos pertenecientes a este punto muestran un buen acuerdo, como se pone de manifiesto en la tabla 4.2.10, donde se comparan las actividades medias de la muestra separada por granulometría y la correspondiente a la misma profundidad.

NUCLIDO	MEDIA GRANUL.	SONDEO PROF.
^{234}Th	1.95 ± 0.41	1.66 ± 0.32
^{230}Th	16.7 ± 1.7	17.4 ± 2.3
^{226}Ra	26.3 ± 3.1	25.5 ± 1.9
^{210}Pb	21.7 ± 1.9	23.6 ± 0.9

Tabla 4.2.10 Comparación entre las concentraciones medias de la muestra separada por granulometría y la muestra correspondiente del sondeo por profundidad.

La conclusión que se puede sacar de esta concordancia es la coherencia entre las medidas realizadas en los dos grupos de muestras.

En este momento es interesante señalar los puntos no aclarados de los comentarios a los resultados obtenidos. Por una parte está el hecho de que la concentración de ^{226}Ra medida es aproximadamente el doble de la que cabría esperar de la composición de los minerales y concentrados manipulados en la FUA. El segundo punto es la aparente migración de los radionúclidos hacia las zonas más profundas de la escombrera.

Los diques de estériles, por su construcción y funcionamiento, son fuertemente heterogéneos. Para iniciar la construcción de una escombrera, se construye un muro de contención de un metro de altura aproximadamente; en el interior del dique se van vertiendo las pulpas húmedas resultantes de la etapa de lixiviación, así como los precipitados de las soluciones gastadas de uranio, procedentes de las etapas posteriores del proceso. Los líquidos que fluyen por el interior del dique son canalizados y recogidos en balsas, donde se procede a su neutralización y precipitación de los metales; los precipitados son vertidos nuevamente al dique. De esta manera se produce una "organización" de la materia sólida, agrupándose las partículas con mayores tamaños de grano en las cercanías del muro de contención, y las de menor tamaño en el centro del dique. Una vez se considera que el dique está lleno, se construye un nuevo muro de contención sobre la parte llena, formándose una especie de escalonamiento.

Al ser los materiales que constituyen los muros no radiactivos, la concentración de los diferentes radionúclidos tenderá a aumentar a medida que nos desplazamos hacia el centro de la escombrera. Esto explica los valores elevados de la concentración de los descendientes del uranio encontrados en las muestras medidas: el sondeo se realizó en la parte media del dique de estériles.

La variación de las concentraciones con la profundidad en el sondeo estudiado no son debidas a la migración de los radionúclidos, que, según los estudios de la caracterización

química del dique <MINGARRO-90>, están mayoritariamente en formas no solubles. La utilización continuada de las terrazas formadas hacía más que posible el que se empezara la construcción y utilización de un nuevo nivel antes de estar el, o los, inmediatamente inferiores totalmente llenos y secos. De esta forma, los materiales más livianos y finos vertidos en terrazas superiores se desplazaban hacia el centro y hacia el interior de la escombrera, resultando en una mayor concentración al aumentar la profundidad.

Es evidente que estas consideraciones no se podrían haber hecho a partir únicamente de las concentraciones de los radionúclidos medidos.

4.2.4 Análisis de tierras de los alrededores de la FUA.

En las instalaciones de la fábrica de uranio de Andújar la práctica totalidad de la actividad remanente se encuentra en los diques de estériles. Sin embargo, dado el gran volumen de minerales transportados hacia sus instalaciones, principalmente por ferrocarril, es posible que se hayan producido algunos vertidos en las áreas próximas a la fábrica debido al movimiento de materiales.

Con objeto de determinar una eventual contaminación en los alrededores de la FUA y proceder a su limpieza se desarrolló un estudio radiométrico detallado con la unidad móvil de radiactividad ambiental del Instituto PRYMA. En aquellos puntos donde se midieron valores más elevados se recogieron muestras superficiales de suelos para su análisis preciso. En este apartado presentaremos los resultados de dichos análisis.

4.2.4.1 Descripción de las muestras.

Se recibieron un total de 17 muestras de tierra superficial, de los primeros cinco centímetros. La zona de muestreo ha sido los alrededores de las instalaciones de la FUA, y en especial, las vías de maniobras de la estación de ferrocarril, que se encuentra en las inmediaciones de la fábrica.

De las muestras a medir se desconocía la concentración previsible de radionúclidos de interés; ésto unido al hecho de disponer de cantidades grandes de cada muestra, alrededor de un kilogramo, nos inclinó a utilizar el detector ReGe, con las geometrías Petri y Marinelli.

4.2.4.2 Comparación de las actividades de Ra-226.

Una vez realizados los análisis por espectrometría

gamma del conjunto de muestras, en algunas de ellas se procedió a la determinación del ^{226}Ra siguiendo un procedimiento radioquímico <GOMEZ-89>. Las actividades obtenidas por los dos métodos muestran un buen acuerdo, y se listan en la tabla 4.2.11.

MUESTRA	RADIOQUIMICA a	ESP.GAMMA b	COCIENTE b/a
1	460. ± 50.	457. ± 78.	0.99 ± 0.20
3	870. ± 40.	925. ± 90.	1.06 ± 0.11
4	2430. ± 60.	2070. ± 180.	0.85 ± 0.08
5	990. ± 40.	1170. ± 120.	1.18 ± 0.13
6	3160. ± 70.	3250. ± 300.	1.03 ± 0.10
7	1310. ± 90.	1510. ± 140.	1.15 ± 0.13
8	23. ± 10.	21. ± 3.	0.93 ± 0.43
9	36. ± 10.	33. ± 4.	0.91 ± 0.28
10	55. ± 10.	41. ± 4.	0.74 ± 0.15
11	960. ± 40.	925. ± 39.	0.96 ± 0.06
13	690. ± 40.	725. ± 78.	1.05 ± 0.13
15	7360. ± 210.	8050. ± 600.	1.09 ± 0.09
21	1660. ± 140.	1060. ± 100.	0.64 ± 0.08

Tabla 4.2.11 Comparación de las actividades de ^{226}Ra medidas por espectrometría gamma y por radioquímica. Las actividades están expresadas en Bq/kg y el error corresponde a dos sigmas.

El valor medio de los cocientes de actividades es 0.97 con una desviación estándar de 0.16. Según este resultado los valores son razonablemente concordantes, si bien presentan alguna dispersión. En efecto, en algunas muestras, (4, 5, 7, 10 y 21) los cocientes se alejan de la unidad más de un quince por ciento. En estos casos, comparando las actividades con las obtenidas de otros isótopos de la serie del ^{238}U , que se presentarán más adelante, parecen tener mayor coherencia las de espectrometría

gamma.

4.2.4.3 Resultados obtenidos.

Las concentraciones de los radionúclidos de la serie del ^{238}U en las muestras medidas se presentan en la tabla 4.2.12.

	^{234}Th	^{230}Th	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{214}Bi
1	316. ± 22.	590. ± 120.	457. ± 78.	429. ± 40.	374. ± 9.	347. ± 18.
2	446. ± 34.	1040. ± 140.	805. ± 70.	876. ± 44.	602. ± 12.	652. ± 13.
3	656. ± 51.	1130. ± 170.	925. ± 90.	1085. ± 48.	758. ± 23.	687. ± 21.
4	1560. ± 110.	2870. ± 260.	2070. ± 180.	2171. ± 87.	1631. ± 65.	1485. ± 53.
5	870. ± 54.	1140. ± 270.	1170. ± 120.	890. ± 94.	807. ± 40.	670. ± 84.
6	2310. ± 190.	4200. ± 450.	3250. ± 300.	3470. ± 130.	2664. ± 80.	2423. ± 84.
7	1200. ± 120.	1760. ± 160.	1510. ± 140.	1610. ± 48.	1223. ± 49.	1112. ± 42.
8	26.4 ± 1.6	< 160.	21.4 ± 2.9	54.4 ± 5.4	22.0 ± 1.4	19.1 ± 1.1
9	37.1 ± 2.6	< 170.	32.6 ± 4.2	36.5 ± 5.5	32.5 ± 1.9	29.1 ± 1.5
10	42.9 ± 8.6	< 210.	40.9 ± 4.3	43.4 ± 2.8	34.3 ± 2.0	32.1 ± 1.7
11	570. ± 46.	1160. ± 110.	925. ± 39.	933. ± 29.	745. ± 30.	683. ± 27.
12	82. ± 13.	< 220.	71. ± 19.	49. ± 16.	55.5 ± 3.6	50.0 ± 2.9
13	686. ± 56.	920. ± 230.	725. ± 78.	577. ± 65.	510. ± 25.	460. ± 15.
14	562. ± 40.	< 770.	744. ± 42.	507. ± 46.	537. ± 27.	500. ± 15.
15	3320. ± 140.	8180. ± 850.	8050. ± 600.	6700. ± 380.	5990. ± 290.	5880. ± 110.
17	218. ± 21.	< 380.	372. ± 40.	307. ± 40.	267. ± 14.	258. ± 10.
21	629. ± 64.	1140. ± 350.	1060. ± 100.	900. ± 51.	981. ± 47.	966. ± 22.

Tabla 4.2.12 Concentraciones de los radionúclidos de la serie del ^{238}U medidos en las tierras. Las actividades están en Bq/kg y las incertidumbres corresponden a dos sigmas.

Se observa que las actividades de las muestras medidas varían en dos órdenes de magnitud, indicando diversos orígenes de las mismas. Las muestras números 8, 9, 10 y 12 presentan las concentraciones más bajas, inferiores a 100 Bq/kg; éste es el intervalo típico de la concentración de los radionúclidos de la



serie del ^{238}U en suelos normales. Las concentraciones en el resto de las muestras es sensiblemente superior.

En la tabla 4.2.12 se han incluido las actividades de ^{214}Pb y ^{214}Bi , descendientes del radón. Comparadas con las de ^{226}Ra , que se calcularon siguiendo el método directo, resultan ser siempre más bajas, indicando una falta de equilibrio. En efecto, las muestras fueron medidas después de su recepción, una vez preparadas, sin esperar a que se alcanzara el equilibrio secular entre ^{226}Ra y ^{222}Rn y descendientes, por lo que los resultados son lógicos.

Al igual que en la discusión de los resultados de secciones previas, es conveniente contar con las relaciones entre las concentraciones de los distintos radionúclidos. Para este fin seguiremos utilizando el ^{226}Ra como base. En la tabla 4.2.13 se muestran los cocientes entre las actividades de ^{234}Th , ^{230}Th y ^{210}Pb y las de ^{226}Ra .

En todas las muestras se aprecia una concordancia entre las concentraciones de ^{226}Ra , ^{230}Th y ^{210}Pb , dentro de los márgenes de las incertidumbres experimentales. Este hecho pone de manifiesto el estado de equilibrio secular entre los descendientes del ^{230}Th .

Sin embargo, las concentraciones de ^{234}Th son, a excepción de las muestras con menores actividades (8, 9, 10 y 12), sensiblemente inferiores a las del resto de radionúclidos de la serie del ^{238}U . Queda constancia de una separación parcial del uranio en las muestras.

Los valores medios de los cocientes de actividades $^{230}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ y $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ son 1.20 ± 0.13 y 0.94 ± 0.16 respectivamente. En el caso del ^{230}Th , donde las concentraciones son siempre superiores a las de ^{226}Ra (a excepción de la muestra 5 y de los casos en los que no ha sido detectado), es posible la existencia de un error sistemático que tienda a supervalorar las

actividades. Las actividades de ^{210}Pb y ^{226}Ra presentan una mayor concordancia, aunque existen valores dispares, como es el caso de la muestra 8. En los dos casos, las desviaciones típicas de la media permiten decir que estos tres isótopos están en equilibrio secular.

	$^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$	$^{230}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$
1	0.69 ± 0.13	1.29 ± 0.34	0.94 ± 0.18
2	0.554 ± 0.064	1.29 ± 0.21	1.09 ± 0.11
3	0.709 ± 0.088	1.22 ± 0.22	1.17 ± 0.13
4	0.754 ± 0.084	1.39 ± 0.17	1.05 ± 0.10
5	0.744 ± 0.089	0.97 ± 0.25	0.76 ± 0.11
6	0.711 ± 0.088	1.29 ± 0.18	1.07 ± 0.11
7	0.80 ± 0.11	1.16 ± 0.15	1.07 ± 0.10
8@	1.23 ± 0.20	-	2.54 ± 0.46
9@	1.14 ± 0.17	-	1.12 ± 0.22
10@	1.05 ± 0.24	-	1.06 ± 0.13
11	0.616 ± 0.056	1.25 ± 0.13	1.009 ± 0.053
12@	1.16 ± 0.36	-	0.69 ± 0.29
13	0.95 ± 0.13	1.27 ± 0.35	0.80 ± 0.12
14	0.755 ± 0.077	-	0.681 ± 0.072
15	0.412 ± 0.035	1.02 ± 0.13	0.832 ± 0.078
17	0.59 ± 0.11	-	0.83 ± 0.14
21	0.593 ± 0.082	1.08 ± 0.35	0.849 ± 0.093
MEDIA	0.68 ± 0.13	1.20 ± 0.13	0.94 ± 0.16
	0.79 ± 0.23		

Tabla 4.2.13 Cocientes de actividades $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$, $^{230}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ y $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ de las muestras de tierras. Los valores con el símbolo @ no se utilizaron para calcular la media indicada en primer lugar.

Las actividades medidas en las tierras están por debajo de las de los estériles, en especial la de ^{234}Th . Las concentraciones de uranio correspondientes a las actividades medidas de ^{234}Th varían entre 2.6 y 260 ppm, encontrándose cuatro muestras (4, 6, 7 y 15) con concentraciones por encima de 100 ppm, o lo que es igual, 0.12 por mil en U_3O_8 . Estas concentraciones son las típicas de los minerales de uranio tratados en la FUA, como se comentó con anterioridad.

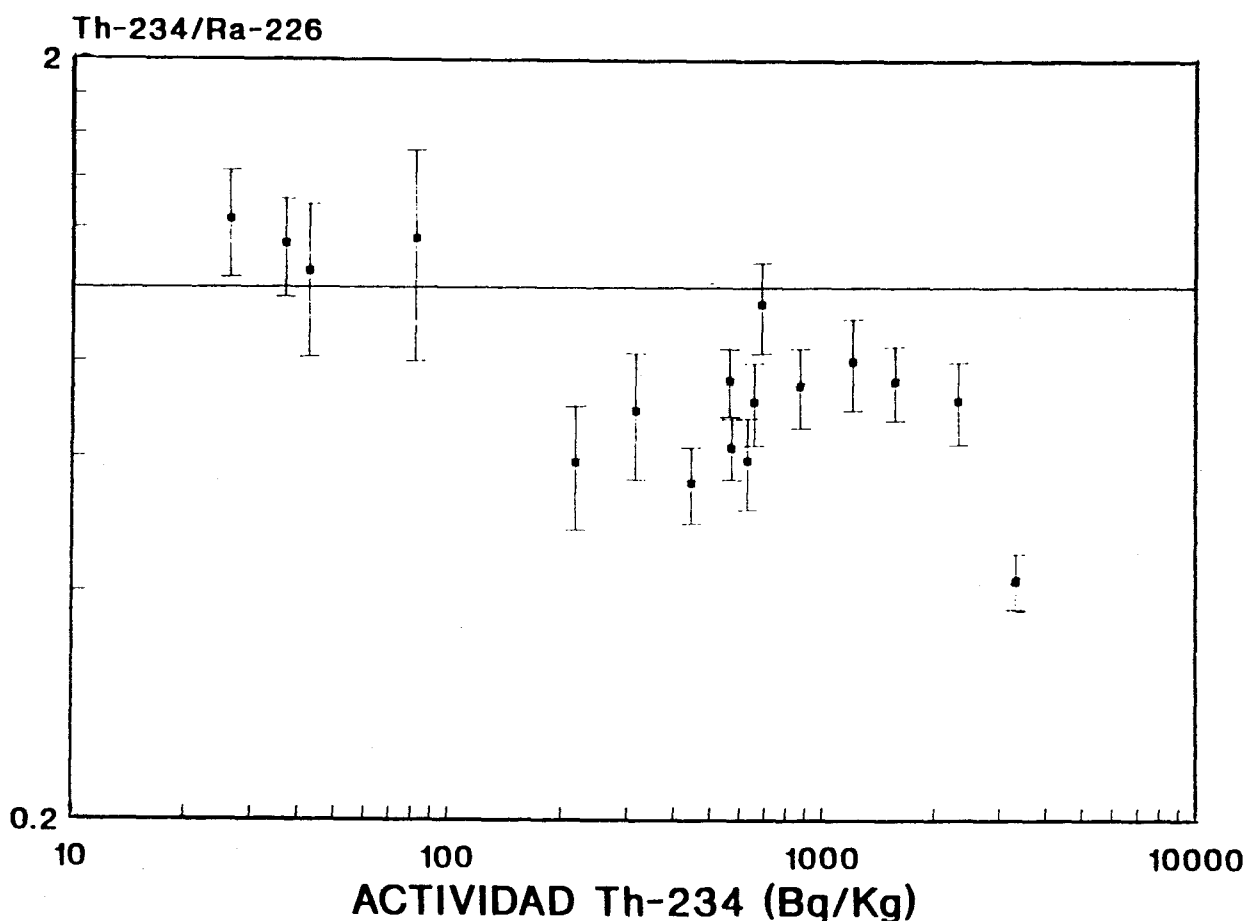


Figura 4.2.9 Variación de la relación de actividades $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ en función de la concentración de ^{234}Th .

La relación de actividades entre ^{234}Th y el resto de radionúclidos es mayor que la encontrada en las muestras de estériles. Recordemos que la relación media $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ en los

estériles era 0.07 aproximadamente, frente a 0.8, que es la media de todas las muestras a excepción de las cuatro con menores contenidos de ^{234}Th . En la figura 4.2.9 se representa el comportamiento del cociente de actividades $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ frente a la actividad del primero. Se pueden diferenciar claramente la división de muestras que se hizo antes: por un lado las que tenían actividades por debajo de 100 Bq/kg, cuyos cocientes son próximos a la unidad, y las muestras más activas, que parecen tener un defecto de ^{234}Th .

Podría pensarse en una falta de equilibrio entre ^{234}Th y ^{238}U como responsable del comportamiento observado. Sin embargo, las concentraciones de ^{226}Ra , calculadas asumiendo dicho equilibrio, son consistentes con las de los otros descendientes de la serie, y con las calculadas siguiendo el procedimiento radioquímico. Por tanto, hemos de concluir que una fracción del uranio presente en las tierras ha desaparecido.

En cuanto al origen de los radionúclidos medidos, la presencia de las instalaciones de la FUA en las inmediaciones nos ofrece la causa. Por los valores de las concentraciones está claro la presencia de material extraño en algunas de las tierras medidas. El desequilibrio entre ^{238}U y sus descendientes hace pensar que no sólo están presentes minerales de uranio en estas muestras. Por otra parte, comparando los valores del cociente de actividades $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ en los estériles y en las tierras parece también claro que no son equivalentes. La mezcla de estériles y minerales motivada por la manipulación de estos materiales sí podría corresponder a los parámetros observados en algunas tierras.

5. CONCLUSIONES.

Los espectrómetros gamma convencionales muestran limitaciones en su aplicación a emisores gamma de baja energía ($E < 100$ keV). La aplicación de la espectrometría gamma para la determinación de estos radionúclidos requiere detectores adecuados, además de la consideración del problema de la autoabsorción; estos temas han sido desarrollados en la presente memoria sobre "Aplicaciones ambientales de la espectrometría gamma de bajas energías", cuyas conclusiones se exponen a continuación.

1. Se han calibrado y puesto a punto dos sistemas detectores aptos para la medida de emisores gamma de bajas energías. El sistema LEPS, formado por dos detectores de germanio de tipo plano, es idóneo para la medida de emisiones gamma con energías comprendidas entre 10 y 300 keV. Mediante la adición de los espectros colectados con cada detector con el programa LULEPS se obtiene un espectro suma que mantiene las prestaciones de resolución energética de cada detector por separado, elevando la eficiencia de recuento al doble. El detector de germanio tipo n ReGe mantiene las prestaciones de los espectrómetros de germanio coaxiales en la zona de altas energías ($E > 100$ keV), si bien la inversión de los contactos eléctricos en el diodo semiconductor y la utilización de una ventana de berilio permite la medida de fotones con energías de hasta 10 keV. Las especiales características de este detector lo hacen adecuado para la medida de fotones con energías entre 10 y 2000 keV.

2. El sistema LEPS presenta una mejor resolución energética que el detector ReGe. Por contra, la limitación en el tamaño de las muestras hace que su sensibilidad sea inferior.

3. Las áreas de fondo de radionúclidos naturales son menores en el sistema LEPS, con un blindaje de hierro, que en el detector ReGe. La utilización de un blindaje de hierro para los detectores tipo n permite mejorar la sensibilidad de éstos en la determinación de radionúclidos naturales.

4. Del análisis de un conjunto de muestras de Al_2O_3 con diferentes proporciones de PbO se pone de manifiesto la disminución de la eficiencia al aumentar la densidad y el número atómico de las muestras. Así mismo, se constata la dificultad de la preparación de muestras sintéticas de calibración.

5. El empleo de matrices de calibración naturales, similares a las muestras a medir, conduce a resultados correctos en la determinación de emisores gamma de bajas energías. Los ensayos con el método de transmisión indican la similitud entre las muestras medidas y las utilizadas para la calibración.

6. La bondad de las calibraciones se ha demostrado mediante la participación en seis ejercicios de intercomparación, con la medida de dos muestras estándar y por comparación con los resultados obtenidos con otras técnicas analíticas.

7. La aplicación del detector ReGe a la datación de sedimentos marinos supone varias ventajas frente a los métodos tradicionales, al determinarse en una misma medida ^{210}Pb , ^{226}Ra y ^{137}Cs , junto con otros emisores gamma de forma no destructiva. Se ha comprobado la importancia de la elección del blindaje para la reducción de las incertidumbres en las concentraciones de ^{210}Pb en exceso.

8. El primer núcleo de sedimentos medido, PA-31, ha podido ser datado a pesar de las importantes incertidumbres en las concentraciones de ^{210}Pb en exceso. Los resultados de estas medidas han sido corroborados por las concentraciones de $^{239,240}\text{Pu}$ y ^{241}Am , obtenidas por otras técnicas radioanalíticas.

9. La utilización de un detector ReGe con un blindaje de hierro y el aumento de los tiempos de contaje han permitido una disminución importante en las incertidumbres de las concentraciones de ^{210}Pb en exceso en el núcleo PA-16.

10. Del análisis de los perfiles de ^{137}Cs en los dos núcleos de sedimentos medidos se comprueba la movilidad de este radionúclido en algunos sedimentos, y el comportamiento conservativo del mismo en la columna de agua.

11. Se presentan los inventarios de ^{137}Cs y ^{210}Pb en exceso correspondientes a seis puntos de la costa almeriense. Los valores de flujo e inventario de ^{210}Pb en exceso son los primeros que se publican del Mar Mediterráneo. En relación con el ^{137}Cs , los datos en este mar que aparecen en la literatura corresponden a localizaciones con instalaciones nucleares en las proximidades.

12. Se presenta un método original para la determinación directa de ^{226}Ra por espectrometría gamma. Entre las ventajas del método propuesto destaca la ausencia de un periodo de espera a que se alcance el equilibrio secular, la falta de tratamiento químico de la muestra y el carácter no destructivo y multielemental, que permite la determinación simultánea de varios radionúclidos de la serie del uranio

13. El análisis de los componentes de la serie de ^{238}U permite conocer el comportamiento diferencial de cada uno de éstos mediante el estudio de los estados de equilibrio entre los miembros de la serie. Con el sistema LEPS se han podido determinar ^{234}Th , ^{230}Th , ^{226}Ra y ^{210}Pb , además de ^{235}U , ^{231}Pa y ^{223}Ra , y estudiar su distribución en las escombreras de estériles de la fábrica de uranio de Andújar. Los resultados presentados son coherentes con los datos sobre el proceso de fabricación de los concentrados de uranio.

14. Los sistemas detectores descritos en esta memoria y el método de determinación directa de ^{226}Ra por espectrometría gamma han sido empleados también para la medida de tierras de las cercanías de la antigua fábrica de uranio de Andújar, mostrando su utilidad en la determinación de radionúclidos naturales. De las concentraciones de estos radionúclidos se pueden efectuar hipótesis sobre la procedencia de las muestras, a partir del estudio de los estados de equilibrio.

6. BIBLIOGRAFIA.

- Anderson A.L. y Kaifer R.C. (1982) "Six-inch-square phoswich detector array for plutonium lung counting", actas de: Hazard Control Department Annual Technology Review, editor R.V.Griffith, Lawrence Livermore National Laboratory.

- Appleby P.G. (1987) "²¹⁰Pb dating of lakes sediments and obrontrophic peats by gamma assay", comunicación personal.

- Armantrout G.A. (1982) "Radiation detectors: needs and prospects", Nucl. Instrum. Meth. 193 41.

- Aubin G., Barrette J., Lamoureux G. y Monaro S. (1969) " Calculated relative efficiency for coaxial and planar Ge(Li) detectors", Nucl. Instrum. Meth. 76 85.

- Beasley T.M., Carpenter R. y Jennings C.D. (1982) "Plutonium, ²⁴¹Am and ¹³⁷Cs ratios, inventories and vertical profiles in Washington and Oregon continental shelf sediments", Geochim. Cosmochim. Acta 46 1931.

- Berger C.D. y Goans R.E. (1981) "A comparison of the NaI-CsI phoswich and hyperpure germanium array for in vivo detection of actinides", Health Phys. 40 535.

- Bland C.J. (1985) "Radiometric determination of ²¹⁰Pb in powder samples by the method of standard additions", Int. J. Appl. Radiat. Isot. 36 733.

- Buessler K.O., Livingston H.D. y Sholkovitz E.R. (1986) "^{239,240}Pu and excess ²¹⁰Pb inventories along the shelf and slope of the northeast U.S.A.", Earth Planet. Sci. Lett. 76 10.

- Carpenter R., Bennett J.T. y Peterson M.L. (1981) " ^{210}Pb activities in and fluxes to sediments of the Washington continental slope and shelf", *Geochim. Cosmochim. Acta* 45 1155.

- Cherry R.D. y Heyraud M. (1988) "Lead-210 and polonium-210 in the world's oceans", en *Inventories of selected radionuclides in the oceans*, IAEA TECDOC-481, Viena.

- Chouak A., Vuister P., Paic G., Berrada M. y Csikai J. (1978) "Determination of U and Ra in rock samples by gamma-spectrometric method", *J. Radioanal. Chem.* 45 445.

- Clemente C., Travesí A. y Palomares J. (1978) "Aplicación de la espectrometría gamma de bajas energías con detectores Ge(Li) al análisis por activación neutrónica", *An. Quim.* 74 1058.

- Crouthamel C.E., Adams F. y Dams R. (1970) "Applied gamma ray spectrometry", Pergamon Press, Londres.

- Crowell J.M. (1981) "A dual germanium detector system for the routine assay of low level transuranics in soil", *IEEE Trans. Nucl. Sci.* NS-28 282.

- Crozaz G. (1964) "Antarctic snow chronology with ^{210}Pb ", *J. Geophys. Res.* 69 2597.

- Crozaz G. (1967) "Datation des glaciers par le ^{210}Pb ", *Procc. Second Symposium on Radiactive Dating*, IAEA, Viena pg 385.

- Currie L.A. (1968) "Limits for qualitative detection and quantitative determination", *An. Chem.* 40 586.

- Cutshall N.H., Larsen I.L. y Olsen C.R. (1983) "Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples: self-absorption correction", *Nucl. Instrum. Meth.* 206 309.

- Davis R.D., Hess C.T., Norton S.A., Hanson D.W. Hoagland K.D. y Anderson D.S. (1984) "¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb dating of sediments from soft-water lakes in New England (USA) and Scandinavia, a failure of ¹³⁷Cs dating", Chem. Geol. 44 151.

- Debertain K. y Grosswendt B. (1982) "Efficiency calibration of semiconductor detectors by primary standard sources and Montecarlo calculations", Nucl. Instrum. Meth. 203 343.

- Debertain K. y Helmer R.G. (1988) "Gamma and X-ray spectrometry with semiconductor detectors", Elsevier Science Publishers, Amsterdam.

- Delfanti R. y Papucci C. (1986) "Il comportamento dei transuranici nell'ambiente marino costiero", Acqua Aria 6 625.

- Donn J.J. y Wolke R.L. (1977) "The statistical interpretation of counting data from measurements of low level radioactivity", Health Phys. 32 1.

- Dryak P. (1986) "Approximation of energy dependence of the semiconductor spectrometer", Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A242 338.

- Eakins J.D. y Morrison R.T. (1976) "A new procedure for the determination of ²¹⁰Pb in lake and marine sediments", United Kingdom Atomic Energy Authority, Harwell, AERE-R8475.

- Eisenbud M. (1987) "Environmental radioactivity from natural, industrial and military sources", Academic Press, Orlando, Florida.

- El Daoushy F. (1978) "The determination of ²¹⁰Pb and ²²⁶Ra in lake sediments and dating applications", Institute of Physics, Uppsala University. Report UUIP-979.

- El Daoushy F. (1981) "An ionization chamber and a Si detector for ^{210}Pb chronology", Nucl. Instrum. Meth. 188 647.

- El Daoushy F. (1986) "Scandinavian limnochronology of sediments and heavy metals", Hydrobiologia 143 267.

- El Daoushy F. (1988) "The ^{210}Pb global cycle: dating and tracing applications", Low Level Measurements and their Applications to Environmental Radioactivity, M. García-León y G. Madurga editores. World Scientific, Singapur.

- Environmental Protection Agency U.S. EPA (1980) "Upgrading environmental radiation data", Health Physics Society Committee Report HPSR-1.

- Erdtmann G. y Soyka W. (1979) "The gamma rays of the radionuclides", Verlag Chemie, Weinheim.

- Gaggeler H., Von Gunten H.R. y Nyeffeler U. (1976) "Determination of ^{210}Pb in lake sediments and air samples by direct gamma-ray measurement", Earth Planet. Sci. Lett. 33 119.

- García León M., García Montaña E. y Madurga G. (1984) "Characterization of ^{99}Tc by the shape of its plateau with a gas-flow proportional counter", Int. J. Appl. Radiat. Isot. 35 195.

- García Tenorio R. (1986) "Estudios sobre el método de fechado por ^{210}Pb y su aplicación a sedimentos", Tesis doctoral, Universidad de Sevilla.

- Gascó C., Iranzo E., Martínez Lobo A. y Romero L. (1988) "Estudio de la distribución temporal de radionucleidos de vida larga en sedimentos marinos del S.E. español", actas de: International Conference on Environmental Radioactivity in the Mediterranean Area, Barcelona.

- Goldberg E.D. (1963) "Geochronology with ^{210}Pb ", Procc. First Symposium on Radioactive Dating, IAEA, Viena pg 121.

- Gómez V., Heras M.C. y García M.R. (1989) "Procedimiento para la determinación de ^{226}Ra y ^{224}Ra en suelos mediante separación radioquímica y posterior medida alfa con contador proporcional de flujo continuo de gas", procedimiento específico PR-X2-04, CIEMAT, Madrid.

- Hanna G.C., Kirkwood D.H. y Pontecorvo B. (1949), Phys. Rev. 75 985. Citado en <CROUTHAMEL-70>.

- Harley N.H. y Pasternack B.S. (1979) "Potential carcinogenic effects of actinides in the environment", Health Phys. 37 291.

- Hartwell J.K. (1975) "Detection limits for radioanalytical counting techniques", Atlantic Richfield Hanford Company, Report ARH-SA-215.

- Head J.H. (1972) "Minimum detectable photopeak areas in Ge(Li) spectra", Nucl. Instrum. Meth. 98 419.

- Heath R.L., Hofstadter R. y Hughes E.B. (1979) "Inorganic scintillators: a review of techniques and applications", Nucl. Instrum. Meth. 162 431.

- Helz G.R., Setlock G.H., Cantillo A.Y. y Moore W.S. (1986) "Processes controlling the regional distribution of ^{210}Pb , ^{226}Ra and anthropogenic zinc in estuarine sediments", Earth Planet. Sci. Lett. 76 23.

- Helmer R.G. y McCullagh C.M. (1983) "GAUS VII, a computer program for the analysis of gamma-ray spectra from Ge semiconductor spectrometers", Nucl. Instrum. Meth. 206 477.

- Helmer R.G. y Reich C.W. (1984) "Emission probabilities and energies of gamma-ray transitions from the decay of ^{235}U ", Int. J. Appl. Radiat. Isot. 35 783.

- Hernández D., Righetti M. y Chagaray J. (1984) "Medición de ^{239}Pu y ^{241}Am con detectores de CsI(Tl) y de HgI_2 ", IAEA SM-276/64, pg 233.

- Hofstadter R. (1948), Phys. Rev. 74 100. Citado en <DEBERTIN-88>.

- Holm E., Fukai R. y Whitehead M.E. (1988) "Radiocaesium and transuranium elements in the Mediterranean Sea: Sources, inventories and environmental levels", actas de: International Conference on Environmental Radioactivity in the Mediterranean Area. Ed SNE-ENS, Barcelona.

- Hubbell J.H. (1982) "Photon mass attenuation and energy-absorption coefficients from 1 keV to 20 MeV", Int. J. Appl. Radiat. Isot. 33 1269.

- Hutchinson J.M.R. y Mann W.B. (1973) "Low level radioactivity measurements", Nucl. Instrum. Meth. 112 305.

- International Atomic Energy Agency (1988) "Report on the intercomparison run SD-A-1: radionuclides in marine sediment", IAEA/AL/012, Viena.

- International Atomic Energy Agency (1990a) "Report on the intercomparison run IAEA-321: radionuclides in milk powder", IAEA/AL/026, Viena.

- International Atomic Energy Agency (1990b) "Report on the intercomparison run IAEA-352: radionuclides in tuna fish flesh", IAEA/AL/032, Monaco.

- International Atomic Energy Agency (1991) "Report on the intercomparison run IAEA-156: radionuclides in clover", IAEA/AL/035, Viena.

- Institute of Electrical and Electronics Engineers, IEEE (1986) "IEEE standard test procedures for germanium gamma-ray detectors", ANSI/IEEE Std.325.

- International Commission on Radiological Protection, ICRP (1983) "Radionuclide transformations: energy and intensity of emissions", ICRP publication 38, Annals of the ICRP, Vol. 11-13.

- International Commission on Radiological Units and Measurements, ICRU (1972) "Measurement of low level radioactivity", Report 22.

- Iñara I.A.L. (1989) "Los residuos radiactivos", MOPU, Madrid.

- Iranzo E., Iranzo M.E. y Mingot F. (1985) "Informe resumido sobre la vigilancia radiológica realizada en la zona de Palomares (Almería)", informe JEN/PRYMA/M1/A--/7/1985, Madrid.

- Israel H.I., Lier D.W. y Storm E. (1971) "Comparison of detectors used in measurements of 10 to 300 keV X-ray spectra", Nucl. Instrum. Meth. 91 141.

- Jenkins C.E. y Langford J.C. (1974) "⁵⁵Fe concentration and specific activities in North Pacific marine organism", IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-21 517.

- Jennings C.D., Delfanti R. y Papucci C. (1985) "The distribution and inventory of fallout plutonium in sediments of the Ligurian Sea, near La Spezia, Italy", J. Environ. Radioactivity 2 293.

- Joshi S.R. (1987a) "Non-destructive determination of ^{210}Pb and ^{226}Ra in sediments by direct photon analysis", J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles 116 169.

- Joshi S.R. (1987b) "Non-destructive determination of selected U and Th series radionuclides in biological samples", Health Phys. 53 417.

- Joshi S.R. (1989) "Determination of ^{241}Am in sediments by direct counting of low-energy photons", Int. J. Radiat. Appl. Instrum. Part A Appl. Radiat. Isot. 40 691.

- Juznic K. y Fedina S. (1986) "Radiochemical determination of ^{90}Sr and ^{89}Sr in soil", Fresenius Z. Anal. Chem. 323 261.

- Kathren R.L. (1984) "Radioactivity in the environment: sources, distribution and surveillance", Harwood Academic Publishers, Nueva York.

- Kaye J.H., Brauer F.P., Connally R.E. y Rieck H.G. (1972) "Background reductions obtained with gamma detectors by use of massive cosmic-ray shielding", Nucl. Instrum. Meth. 100 333.

- Knoll G.F. (1979) "Radiation detection and measurement", John Wiley & Sons, Nueva York.

- Koskelo M.J., Aarnio P.A. y Routti J.T. (1981) "SAMPO80: minicomputer program for gamma spectrum analysis with nuclide identification", Computer Physics Communications 24 11.

- Kraner H.W., Chasman C. y Jones K.W. (1968), Nucl. Instrum. Meth. 62 1/3. Citado en <PEHL-79>.

- Lane R.C., McCormick W.B., Jefferies S.J. y Danyluk P. (1984) "Use of six-element arrays of hyperpure germanium

detectors in monitoring for internal actinide contamination", actas de: International Symposium on the Assessment of Radioactive Contamination in Man, Paris. IAEA SM-276 24.

- Larsen I.L. y Lee S.Y. (1983) "Non-destructive photon analysis of ^{241}Am in soils and sediments utilizing self-absorption corrections", J. Radioanal. Chem. 79 165.

- Lau Mipm H.M., Sakanoue M. y Komura K. (1982) "Absolute determination of uranium concentration by hyperpure germanium LEPS", Nucl. Instrum. Meth. 200 561.

- Livingston H.D. y Bowen V.T. (1979) "Pu and ^{137}Cs in coastal sediments", Earth Planet. Sci. Lett. 43 29.

- Malm H.L., Watt M.M., Bostock I., Campbell J.L., Jagan P. y Simpson J.J. (1984) "Background reductions in germanium spectrometers: material selection, geometry and shielding", Nucl. Instrum. Meth. 223 420.

- Martí J.M. (1986) "Estudio de la eficiencia de un sistema de espectrometría gamma de alta resolución", Tesina de licenciatura, Universidad Autónoma de Barcelona.

- Martí J.M. (1990) "Puesta a punto de un sistema de espectrometría gamma de alta resolución dotado con un blindaje activo y su aplicación a la comprobación radiométrica de los frentes marinos", Tesis doctoral, Universidad Autónoma de Barcelona.

- Martínez Lobo A., Palomares J., Romero L. y Travesí A. (1986) "Un sistema de espectrometría gamma de fotones de baja energía mediante acoplamiento de dos detectores", report CIEMAT-598, Madrid.

- Martínez Lobo A. (1988a) "Determinación de ^{226}Ra por espectrometría gamma", report CIEMAT-618, Madrid.

- Martínez Lobo A., Palomares J. y Palomares F. (1988b) "Medida de ^{210}Pb y ^{210}Po en sedimentos", actas de la XIV Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española, Marbella.

- Martínez Lobo A. (1988c) "A low energy photon spectrometer for environmental samples", Low-level Measurements and their Applications to Environmental Radiactivity", M. García-León y G. Madurga editores. World Scientific, Singapur.

- Martínez Lobo A. y Palomares J. (1989) "Determinación directa de ^{226}Ra en tierras por espectrometría gamma", actas de la XV reunión anual de la Sociedad Nuclear Española, Alicante.

- Martínez Lobo A., Romero L. y Palomares J. (1990) "Datación de sedimentos marinos por ^{210}Pb y ^{137}Cs ", actas de la XVI Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española, Oviedo.

- Martínez Lobo A., Romero L. y Palomares J. (1991a) "Calibración de un detector coaxial de germanio tipo N y aplicación a la datación de sedimentos marinos", aceptado para su publicación en An. Fis.

- Martínez Lobo A. y Palomares J. (1991b) "On the determination of ^{226}Ra in soils and uranium ores by direct gamma ray spectrometry", aceptado para su publicación en J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles 147 225.

- Matsuda H. y Sakanoue M. (1975) "Some characteristics of low energy photon spectrometers (LEPS) and its applications to radiochemical studies of zircon", The Science Reports of Kanazawa University 20 87.

- Matsumoto E. y Wong C.S. (1977) "Heavy metal sedimentation in Saanich Inlet measured with ^{210}Pb technique", J. Geophys. Res. 82 5477.

- McIntyre J.A. y Hofstadter R. (1950) Phys. Rev. 78

617. Citado en <HEATH-79>.

- Miller K.M. (1987) "Self-absorption corrections for gamma ray spectral measurements of ^{210}Pb in environmental samples", Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A258 281.

- Mingarro E. (1990) comunicación personal.

- Morgan K.Z., Synder W.S. y Ford M.R. (1964) "Relative hazard of the various radioactive materials", Health Phys. 10 151.

- Morón M.C., García-Tenorio R., García-Montaña E., García-León M. y Madurga G. (1986) "An easy method for the determination of Ra isotopes and actinide alpha emitters from the same water sample", Int. J. Radiat. Appl. Instrum. Part A Appl. Radiat. Isot. 37 383.

- Mubarakmand S., Parvez C. y Nagi F.I. (1977) "Absolute determination of uranium concentration in rocks by gamma ray spectroscopy", Nucl. Instrum. Meth. 140 133.

- Muggleton A.H.F. (1972) "Semiconductor X-ray spectrometers", Nucl. Instrum. Meth. 101 113.

- Mundschenk H. (1980) "Sensitivity of a low level Ge(Li) spectrometer applied to environmental aquatic studies", Nucl. Instrum. Meth. 177 563.

- Nakamura T. (1970) "Calculation of the detection efficiency of a 3"·3" NaI(Tl) crystal for a thick disk source", Nucl. Instrum. Meth. 86 163.

- Nakamura T. (1972) "Montecarlo calculation of efficiencies and response functions of NaI(Tl) crystals for thick disk gamma-ray sources and its application to Ge(Li) detectors", Nucl. Instrum. Meth. 105 77.

- Nakamura T. (1975) "Montecarlo calculation of peak efficiencies and response functions of coaxial-type Ge(Li) detectors for disk gamma-ray sources", Nucl. Instrum. Meth. 131 521.

- Nakamura T. y Suzuki T. (1983) "Montecarlo calculation of peak efficiencies of Ge(Li) and pure Ge detectors to voluminal sources and comparison with environmental radioactivity measurements", Nucl. Instrum. Meth. 205 211.

- Nogushy M., Takeda K. y Higuchi H. (1981) "Semi-empirical gamma-ray peak efficiency determination including self-absorption correction based on numerical integration", Int. J. Appl. Radiat. Isot. 32 17.

- Obrusnik I. y Kucera J. (1978) "The digital methods of peak area computation and detection limit in gamma ray spectrometry", J. Radiochem. Radioanal. Letters 32 149.

- Oeschger H. y Wahlen M. (1975) "Low level counting techniques", An. Rev. Nucl. Sci. 25 423.

- Organisation for Economic Co-operation and Development, Nuclear Energy Agency, OCDE (1984) "Aspects radiologiques a long terme de la gestion des dechets resultant de l'extraction et du traitement de l'uranium", OCDE, Paris.

- Pacer R.A. (1983) "The role of Cherenkov and liquid scintillation counting in evaluating the anion-exchange separation of ^{210}Pb , ^{210}Bi and ^{210}Po ", J. Radioanal. Chem. 77 19.

- Paic G., Reggoug A., Paic A. y Chouak A. (1982) "Absolute measurements of the Ra/U ratio in uranium ores using a hyperpure germanium detector", Int. J. Appl. Radiat. Isot. 33 1389.

- Pasternak B.S. y Harley N.H. (1971) "Detection limits for radionuclides in the analysis of multicomponent gamma ray spectrometer data", Nucl. Instrum. Meth. 91 533.

- Pehl R.H. (1977) "Germanium gamma-ray detectors", Physics Today 30 50.

- Pehl R.H., Madden N.W., Elliott J.H., Raundorf T.W., Trammell R.C. y Darken L.S. (1979) "Radiation damage resistance of reverse electrode Ge coaxial detectors", IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-26 321.

- Philippot J.Cl. (1970) "Automatic processing of diode spectrometry results", IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-17 446.

- Powers R.D., Turnage N.E. y Kanipe L.G. (1978) "Determination of ²²⁶Ra in environmental samples", CONF-780422 pg 640.

- Prussin S.G., Perry M.D., Bicknese E.P. y Lamb J.F. (1986) "A small Compton supression shield for Si(Li) detectors", Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A242 410.

- Putnam M., Gipson D.H., Helmer R.G. y Heath R.L. (1965) "A non-linear least-square program for the determination of parameters of photopeaks by the use of a modified gaussian function", U. S. Atomic Energy Commission, Report IDO-17016.

- Randolph R.B. (1975) "Determination of ⁹⁰Sr and ⁸⁹Sr by Cerenkov and liquid scintillation counting", Int. J. Appl. Radiat. Isot. 26 9.

- Raundorf T.W., Trammel R.C. y Darken L.S. (1979) "N-type high purity germanium coaxial detectors", IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-26 297.

- Reus U. y Westmeier W. (1983) "Catalog of gamma rays from radioactive decay", Atomic Data and Nuclear Data Tables 29 1.

- Rieppo R. (1981) "Absolute photopeak efficiency values for planar Ge detectors in the energy region 30-600 keV with self-absorption in the source", Nucl. Instrum. Meth. 179 155.

- Rieppo R. (1987) "The efficiencies of different photon detectors. A review covering work done between 1975 and 1985", Int. J. Radiat. Appl. Instrum. Part A Appl. Radiat. Isot. 38 1.

- Roessler C.E., Smith Z.A., Bolch W.E. y Prince R.J. (1979) "Uranium and ²²⁶Ra in Florida phosphate materials", Health Phys. 37 269.

- Rogers V.C. (1970) "Detection limits for gamma ray spectral analysis", An. Chem. 42 807.

- Romero L. (1986a) "Programa LEPS para suma de espectros gamma de detectores de germanio", report CIEMAT-596, Madrid.

- Romero L. e Iranzo E. (1986b) "Informe de la campaña de muestreo de sedimentos marinos en el sureste de España realizada en octubre de 1985", informe CIEMAT PRYMA M2A/PM01/86, Madrid.

- Romero L. (1988) comunicación personal.

- Romero L., Gascó C. e Iranzo E. (1990) "Transuranics transfer in a spanish marine ecosystem", actas de: First International Conference on Low-level Measurements of Actinides and Long-lived Radionuclides in Biological and Environmental Samples, Bombay.

- Romero L., Martínez Lobo A. y Holm E. (1991) "New aspects on the transuranics transfer in the Palomares marine environment". Aceptado para su presentación en American Nuclear Society, International Topical Conference on Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry II, Hawaii.

- Roy J.-C., Lupien M., Cote J.-E. y Turcotte J. (1983) "Measurements with a planar germanium detector of low energy gamma and X-ray emitters in waters sampled by the floc method", Nucl. Instrum. Meth. 206 553.

- Roy J.-C., Cote J.-E., Durham R.W. y Joshi S.R. (1989) "A study of the indium and germanium photopeaks in the background spectra of Ge spectrometers with a passive shield", J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles 130 221.

- Sánchez Mayoral M.L., Robles M., Navarro E. y Senent F. (1985) "El problema de los límites de detección en espectrometría gamma", An. Fis. B 81 37.

- Savitzky A. y Golay M.J. (1964) "Smoothing and differentiation of data by simplified least squares procedure", Anal. Chem. 36 1627.

- Schötzig U. y Debertain K. (1983) "Photon emission probabilities per decay of ^{226}Ra and ^{232}Th in equilibrium with their daughter products", Int. J. Appl. Radiat. Isot. 34 533.

- Shapiro E.G. y Anderson A.L. (1974) "Dual energy analysis using phoswich scintillation detectors for low-level in vivo counting", IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-21 201.

- Storm E. y Israel H.I. (1967) "Photon cross sections from 0.001 to 100 MeV for elements 1 through 100", Los Alamos Scientific Laboratory, University of California, LA-3753.

- Strauss M.G., Sherman I.S., Swanson E.J. y Pehl R.H. (1978) "Considerations in measuring trace radionuclides in soil samples by L X-ray detection", IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-25 740.

- Strauss M.G., Sherman L.S., Roche C.T. y Pehl R.H. (1986) "Si(Li)-NaI(Tl) sandwich detector array for measurements of trace elements in soils", Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A242 387.

- Suarez del Rey J.A., González J.A. y De Pablo M.A. (1987) "Análisis radioquímico de radio total, ²²⁶Ra y ²²⁴Ra", Report CIEMAT-603, Madrid.

- Travesí A. (1975) "Análisis por activación neutrónica", Ed. JEN, Madrid.

- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation UNSCEAR (1982) "Ionizing radiation: sources and biological effects. 1982 report to the General Assembly", United Nations Publication E.82.IX.8.

- Vidal Quadras A., Blanco M., Ortega M.R., Serra M. y Mitchell P.I. (1987) "Determinación de trazas de ⁵⁵Fe en bioacumuladores marinos", actas del II Congreso Nacional de Protección Radiológica, Toledo.

- Wilson W.E. (1980) "Absolute activity determinations on large volume geological samples independent of self-absorption effects", Nucl. Instrum. Meth. 169 577.

- Whitehead N.E. (1988) "Inventory of ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr in the world's oceans", en Inventories of selected radionuclides in the oceans, IAEA TECDOC-481, Viena.

- Zimmer W.H. y Wagner S.E. (1984) "Measurement techniques for characterizing and using low background germanium detectors", Nucl. Instrum. Meth. 223 412.

A-1 PROGRAMAS DE TRATAMIENTO DE ESPECTROS.

El espectro de energías resultante de una medida con detectores semiconductores de germanio consiste en un gran número de datos, desde 2048 hasta 8192 dependiendo de la ganancia de conversión seleccionada en el ADC. El análisis manual de tan vasta cantidad de información es una labor ciertamente tediosa, razón por la que se trata en la mayoría de los laboratorios de informatizar dicho proceso. Se pueden encontrar en la literatura referencias a un buen número de programas para el tratamiento de los espectros colectados con detectores de germanio; citemos dos de los más conocidos: SAMPO80 <KOSKELO-81> y GAUSS-VII <HELMER-83>.

En el laboratorio de la U.O. de Control Radiológico Externo del CIEMAT se dispone del paquete de programas SPECTRAN-F, suministrado por la casa CANBERRA. En este apéndice se describirán las funciones básicas que se pueden realizar con dicho software, al ser el empleado para el tratamiento de todos los espectros utilizados en esta memoria.

El paquete de software SPECTRAN-F consiste en un conjunto de programas escritos en lenguaje FORTRAN, especialmente adaptados para su aplicación desde un microordenador DIGITAL PDP 11 (recientemente ha aparecido una versión para PC's).

Tres son las funciones básicas que realiza SPECTRAN-F:

- Transferencia de espectros entre el MCA y el ordenador (en ambos sentidos).

- Calibración de los detectores en energías y en eficiencias; estas funciones se realizan desde el programa CALIB.

- Análisis cualitativo y cuantitativo de los espectros, realizados por el programa ANALYZ.

Además de estas tareas básicas, SPECTRAN-F dispone de otros programas auxiliares, que son:

SYSDUM Edita el archivo de parámetros del sistema, con la configuración y asignación de unidades y nombres lógicos.

BTEDIT Edita archivos de comandos para programar diferentes tareas en el MCA (en modo batch).

PKEDIT Edita una librería con energías de picos gamma y los radionúclidos emisores, utilizada para el análisis cualitativo de los espectros.

ANEDIT Edita librerías (hasta 1000) con nombres de radionúclidos, periodos de semidesintegración, energías gamma principales, probabilidades de emisión y energías de confirmación. Estas librerías se emplean en el análisis cuantitativo de los espectros.

SPCLST Realiza un listado de los datos almacenados en el fichero correspondiente a un espectro (tanto los datos del análisis de altura de pulsos como las ecuaciones de calibración y los resultados de los análisis efectuados).

EFFCOM Computa las eficiencias de un detector y una geometría, previamente calibrada, para los valores de la energía deseados.

A-1.1 Funciones de transferencia de espectros.

Las funciones de transferencia de SPECTRAN-F permiten el paso de espectros del MCA al ordenador (comando **TRAsfer**) y

viceversa (comando **RE**trieve).

Cuando se realiza la transferencia del MCA al ordenador de un espectro se crea un fichero con nombre SD****.SPC. En este fichero, además de los datos de análisis de altura de pulsos, se encuentran las identificaciones del MCA de origen, del detector y geometría, tiempo de medida, de decaimiento y tiempo muerto, que son empleados a la hora de procesar el espectro. También se puede introducir en este archivo la unidad dimensional de la muestra medida y su tamaño, así como un pequeño texto con la identificación de la muestra. Todos estos datos se almacenan en el encabezamiento del fichero y aparecerán en los análisis que se realicen.

A-1.2 Funciones de calibración.

Como se indicó anteriormente, las funciones de calibración de SPECTRAN-F se realizan a través del programa CALIB.

A-1.2.1 Calibración en energías.

La calibración en energías permite obtener una relación entre la energía de los fotones y la escala de altura de pulsos del MCA. Una calibración en energías determina la creación de un fichero "detector", o bien reemplaza la que ya había en un detector existente. SPECTRAN-F acepta hasta un máximo de 10000 detectores. Quizás sea conveniente puntualizar que los detectores que aquí mencionamos no corresponden necesariamente a detectores reales, sino a archivos de ordenador en los que se almacena una ecuación energía-canal (así como las ecuaciones eficiencia-energía correspondientes a las geometrías calibradas); un mismo detector "real" puede tener varios de estos ficheros, correspondientes cada uno de ellos a diferentes opciones en los parámetros de la cadena electrónica.

Para realizar la calibración en energías se requiere

un espectro con un mínimo de tres picos, pudiéndose utilizar un máximo de veinte. En cada uno de los picos usados en la calibración se realiza un ajuste de los datos de esa región del espectro a una función gaussiana modificada, por el método de los mínimos cuadrados ponderados. Esta función incluye una cola exponencial en la zona de baja energía del pico, y tiene el propósito de considerar la asimetría en esta región debida a una recolección incompleta de carga en el detector.

Después del ajuste de cada pico se obtienen los valores del centroide, la anchura a mitad del máximo FWHM y el punto de unión de la cola exponencial. Una vez que se han analizado todos los picos de calibración se realizan ajustes por el método de los mínimos cuadrados para determinar los parámetros de la calibración. Las funciones determinadas son:

$$\text{Energía-canal} \quad E \text{ (keV)} = A_1 \cdot C^2 + A_2 \cdot C + A_3$$

$$\text{FWHM-energía} \quad \text{FWHM} \cdot A_2 = B_1 \cdot E^2 + B_2 \cdot E + B_3$$

$$\text{Cola-energía} \quad T \cdot A_2 = K_1 \cdot E + K_2$$

Existe una opción de autocalibrado, que permite, con la medida del mismo patrón utilizado en la calibración en energías, reevaluar la curva energía-canal de forma automática.

A-1.2.2 Calibración en eficiencias.

La calibración en eficiencias relaciona la proporción de fotones que dan lugar a cuentas en el fotopico con la energía de dichos fotones. SPECTRAN-F permite un máximo de cuarenta curvas eficiencia-energía para cada detector, que corresponden a las diferentes geometrías de medida.

Los valores de la eficiencia son determinados

experimentalmente, midiéndose el área bajo un fotopico producido por fotones de intensidad conocida. También es posible introducir valores de la eficiencia previamente calculados. Una vez que se tienen calculadas las eficiencias para una serie de energías se efectúa un ajuste por mínimos cuadrados ponderados a un polinomio en escala logarítmica, de la forma:

$$\ln \text{eff} = \sum_{i=0}^n b_i \cdot (\ln E)^i$$

Para lograr una mayor aproximación entre los datos experimentales y la curva ajustada es posible realizar un doble ajuste, uno para la zona de bajas energías, $E < E_c$, y otro para la de altas energías, $E > E_c$. Ambos polinomios solapan en el punto $E = E_c$, que se puede elegir dependiendo del tipo de detector y del intervalo de energías estudiado.

Se requiere un mínimo de cinco puntos experimentales para realizar el ajuste (dos para la zona de bajas energías, dos para la de altas y el correspondiente a E_c). Dependiendo del número de puntos ajustados variarán los grados, n , de los polinomios ajustados:

$E < E_c$	$n = 2$	Al menos 3 puntos con $E \leq E_c$
	$n = 3$	" " 6 " " "
$E > E_c$	$n = 2$	Al menos 3 puntos con $E \geq E_c$
	$n = 3$	" " 6 " " "
	$n = 4$	" " 8 " " "

A-1.3 Funciones de análisis de espectros.

Una vez que se tiene un detector calibrado en energías y en eficiencias SPECTRAN-F permite procesar y analizar los espectros correspondientes a dicho detector. Se pueden generar tres tipos distintos de informes sobre un espectro, con las

opciones:

PEAK

Realiza un análisis cualitativo del espectro mediante la búsqueda de los picos que aparecen en el mismo. Los resultados ofrecidos son los centroides de los picos, sus áreas e incertidumbres, así como una identificación de los radionúclidos con emisiones comprendidas en una ventana de energía seleccionada alrededor del centroide. Estos radionúclidos serán los que se encuentren en la librería cualitativa.

QUAN

Realiza el mismo análisis cualitativo del espectro, a partir del cual examina la posible presencia de los radionúclidos de una librería cuantitativa (previamente seleccionada), utilizando los picos de confirmación si fuese necesario. Para todos los emisores presentes se calcula la actividad y su incertidumbre.

MDA

Procede de la misma manera que QUAN, realizando el análisis cualitativo y cuantitativo, pero, para los radionúclidos de la librería que no son identificados en el espectro calcula la mínima actividad detectable.

Junto con estos tres tipos de análisis es posible efectuar otras operaciones, como la sustracción del fondo o la elección del nivel de sensibilidad para la localización de los picos y del cálculo de la mínima actividad detectable.

A-2 CERTIFICADOS DE LAS SOLUCIONES Y MUESTRAS PATRONES.

En este apéndice se presentan los certificados de las soluciones patrón utilizadas para la calibración de los dos sistemas detectores empleados en la memoria. Estas soluciones fueron adquiridas a la casa Amersham International.

También se presentan en este apéndice los certificados de las dos muestras patrón utilizadas para la validación de las calibraciones.



Approval No. 0146

Description Principal radionuclide: Selenium-75 Product code: SCZ.64
Solution number: S6/6/8

Measurement Reference time: 1200 GMT on 7 March 1986
Radioactive concentration of selenium-75: 12.57 microcuries per gram of solution
which is equivalent to: 465 kilobecquerels per gram of solution
Mass of solution: 5.0627 grams
Total activity of selenium-75: 63.6 microcuries
which is equivalent to: 2.35 megabecquerels
Method of measurement used (see reverse of the certificate): E

Accuracy Overall uncertainty in the radioactive concentration quoted above: + 3.9 % and - 3.7 %
Random uncertainty: ± 0.6 % Systematic uncertainty: + 3.3 % and - 3.1 %
Overall uncertainty is defined on the reverse of the certificate.

Radionuclidic Purity The estimated activities of any radioactive impurities found by high-resolution gamma ray spectrometry, or in any other examination of the solution, are listed below expressed as percentages of the activity of the principal radionuclide at the reference time.
Other radionuclides less than 0.003 %

Chemical Composition Water containing 50 micrograms of selenium as sodium selenite and 1 milligram of formaldehyde per ml

Physical Data Recommended half life: 119.3 ± 0.3 days
The assumptions made about the decay scheme of selenium-75 are given on a separate sheet.

Remarks

Approved
Signature

A.S. Tuck

Page 1 of 1

Amersham

Certificado 2 Solución patrón de ^{75}Se .



Description Principal radionuclide: Lead-210 Product code: RBZ.44
Daughter radionuclide: Bismuth-210 Solution number: 56/19/8
+ Polonium-210

Measurement Reference time: 1200 GMT on 1 May 1987
Radioactive concentration of lead-210: 1.321 microcuries per gram of solution
which is equivalent to: 48.9 kilobecquerels per gram of solution
Mass of solution: 5.3795 grams
Total activity of lead-210: 7.10 microcuries
which is equivalent to: 263 kilobecquerels

Method of measurement:
Repeated 4-pi alpha counting over a period of 63 days

Accuracy Overall uncertainty in the radioactive concentration quoted above: $\pm 2.5 \%$
Random uncertainty: $\pm 1.1 \%$ Systematic uncertainty: $\pm 1.4 \%$
Overall uncertainty is defined on the reverse of the certificate.

Radionuclidic Purity The estimated activities of any radioactive impurities are listed below expressed as percentages of the activity of the principal radionuclide at the reference time.
Other radionuclides less than 0.02 %

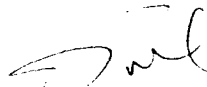
Chemical Composition $2M HNO_3$ containing 100 micrograms of lead and 100 micrograms of bismuth per ml.

Physical Data Recommended half life: 22.3 ± 0.2 years
Lead-210: 100% beta particle emission.
Bismuth-210: 100% beta particle emission. Half life 5.01 ± 0.01 days.
Polonium-210: 100% alpha particle emission. Half life 138.38 ± 0.01 days.

Remarks The ratio of the activity of bismuth-210 to the activity of lead-210 = 1.0006
The ratio of the activity of polonium-210 to the activity of lead-210 = 0.9916 at the reference time and will slowly increase to a theoretical maximum of 1.0179.
There is no guarantee that all the polonium-210 will remain in solution.
Tests made over 4 years on standardized solutions of lead-210 stored in glass ampoules have shown that loss of lead-210 from solution is negligible other than by radioactive decay.

This product meets the quality assurance requirements of NRC Regulatory Guide 4.15 for achieving implicit NBS traceability as defined in NCRP 58 (1985).

Approved
Signature


A.J. Tuck

Certificado 3 Solución patrón de ^{210}Pb .



Description Product code: QCY.44 Solution number: R9/135/63

This mixed radionuclide gamma-ray reference standard consists of a solution in 4M HCl of the nine radionuclides listed below.

Measurement and Accuracy Reference time: 1200 GMT on 1 June 1989

Mass of solution: 5.3907 grams Density: 1.066 g/ml at 20°C

Parent radionuclide	Gamma-ray energy (MeV)	Gamma-rays per second per gram of solution	Random uncertainty	Systematic uncertainty	Overall uncertainty
Cadmium-109	0.088	640	± 0.2 %	± 3.1 %	± 3.3 %
Cobalt-57	0.122	582	± 0.2 %	± 1.8 %	± 2.0 %
Cerium-139	0.136 0.166	692	± 0.3 %	± 3.2 %	± 3.5 %
Mercury-203	0.279	1980	± 0.2 %	± 2.0 %	± 2.2 %
Tin-113	0.392	2111	± 0.4 %	± 4.2 %	± 4.6 %
Strontium-85	0.514	3984	± 0.5 %	± 1.6 %	± 2.2 %
Caesium-137	0.662	2638	± 0.5 %	± 2.5 %	± 3.0 %
Yttrium-88	0.898	6200	± 0.1 %	± 3.6 %	± 3.7 %
Cobalt-60	1.173	3357	± 0.3 %	± 0.5 %	± 0.8 %
Cobalt-60	1.333	3361	± 0.3 %	± 0.5 %	± 0.8 %
Yttrium-88	1.836	6610	± 0.1 %	± 2.6 %	± 2.7 %

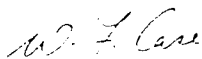
Purity At the reference time the solution also contained the following impurities:

Cobalt-56 equal to 1.2×10^{-7} microcuries per gram
 Cobalt-58 equal to 2.3×10^{-3} microcuries per gram
 Selenium-75 equal to 2.3×10^{-7} microcuries per gram
 Zinc-65 equal to 1.1×10^{-5} microcuries per gram

Remarks Further details, including composition of the solution, methods of measurement, decay scheme assumptions, decay tables and definitions of uncertainties, are given in the data sheet accompanying this certificate.

This product meets the quality assurance requirements of NRC Regulatory Guide 4.15 for achieving explicit NBS traceability as defined in NCRP58 (1985).

Approved
Signatory



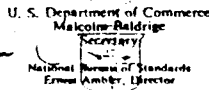
W.F. Case

Page 1 of 1



This certificate is issued for products of the National Institute of Standards and Technology (NIST) Calibration Services. It is issued for the purpose of providing a traceable and accurate measurement of the activity of the radionuclides listed in the certificate. The certificate is valid for the period of time specified in the certificate. The certificate is not valid for use as evidence of the accuracy of the measurement of the activity of the radionuclides listed in the certificate. The certificate is not valid for use as evidence of the accuracy of the measurement of the activity of the radionuclides listed in the certificate. The certificate is not valid for use as evidence of the accuracy of the measurement of the activity of the radionuclides listed in the certificate.

Certificado 4 Cóctel de calibración.



National Bureau of Standards

Certificate

Standard Reference Material 4350B

Environmental Radioactivity

Source description	River Sediment
Source identification	4350B
Reference time	September 9, 1981

General Comments(1)*

This Standard Reference Material (SRM), which has been developed in cooperation with member laboratories of the International Committee for Radionuclide Metrology, consists of approximately 85 grams of freeze-dried, pulverized river sediment⁽²⁾ in a polyethylene bottle. The SRM is intended for use in tests of measurements of environmental radioactivity contained in matrices similar to the sample⁽³⁾.

Working samples of this SRM should be dried in air at 40°C for at least 24 hours prior to weighing.

The material has been tested to a minimum sample size of 5 grams, for which it has been found to be homogeneous⁽⁴⁾.

The ^{239}Pu and ^{240}Pu are recoverable by normal HNO_3 or $\text{HNO}_3\text{-HCl}$ leaching procedures as well as by the more vigorous methods of chemical treatment listed below.

Random and systematic uncertainties have been combined in quadrature at a level corresponding to a standard deviation of the mean; the stated overall uncertainties are 3 times this value and are roughly at the 99-percent confidence level.

When additional data become available, it is expected that other radioactivity concentrations will be certified and purchasers will be notified. To aid in these certifications, users are requested to send their measurement results for uncertified radioactivities together with the methods used to NBS⁽¹⁾.

* See notes

Certificado 5 Muestra de referencia NBS 4350 B.

Radionuclide	Activity Concentration (Bq g ⁻¹) (5)	Total Uncertainty (Percent) (6)	Half-life (years)	Method Code (7)
⁶⁰ Co	4.64 x 10 ⁻³	5.0	5.28	1a, 1f, 5a
¹³⁷ Cs	2.90 x 10 ⁻²	6.3	30.7	1b, 1f, 3a, 4f, 5a
¹⁵² Eu	3.05 x 10 ⁻²	4.0	13.54	3a, 5a
¹⁵⁴ Eu	3.78 x 10 ⁻³	15	8.48	3a, 5a
²²⁶ Ra	3.58 x 10 ⁻²	10		2d
²³⁸ Pu	1.3 x 10 ⁻⁵	17		1c, 2c, 3c
²³⁹ Pu+ ²⁴⁰ Pu	5.08 x 10 ⁻⁴	5.8		1c, 2c, 3c
²⁴¹ Am	1.5 x 10 ⁻⁴	21		1c, 2c, 3c

Mass spectrometry data (8)

This Standard Reference Material was prepared in the Center for Radiation Research, Nuclear Radiation Division, Radioactivity Group, D.D. Hoppes, Group Leader.

Washington, D.C. 20234
September 9, 1981

George A. Uriano, Chief
Office of Standard Reference Materials

SRM 4350B
Page 2

UNCERTIFIED VALUES

The following activities are uncertified because there are no corroborative measurements with which to compare them.

Radionuclide	Activity Concentration (Bq g ⁻¹)	Laboratory	Method Code
⁴⁰ K	5.6 x 10 ⁻¹	RESL	5a
⁵⁵ Fe	1.7 x 10 ⁻²	WHOI	3f
⁹⁰ Sr	5.3 x 10 ⁻³	EML, RESL, WHOI	1b, 2f, 3b, 4e
²²⁸ Th	3.35 x 10 ⁻²	RESL	2c
²³⁰ Th	2.95 x 10 ⁻²	RESL	2c
²³² Th	3.32 x 10 ⁻²	RESL	2c
²³⁴ U	3.32 x 10 ⁻²	RESL	2c
²³⁵ U	1.7 x 10 ⁻³	RESL	2c
²³⁸ U	3.08 x 10 ⁻²	RESL	2c

REFERENCES

BPH 80 R.P. Bernabee, D.R. Percival and F.O. Hindman, Liquid-liquid extraction separation and determination of plutonium and americium, *Analytical Chemistry*, 52 (14), 2351 (1980).

HAR 80 Environmental Measurements Laboratory Procedures Manual, HASL 300 with 8 supplements, J.H. Harley, ed., New York (1980).

LMB 75 H.D. Livingston, D.R. Mann and V.T. Bowen, Analytical procedures for transuranic elements in seawater and marine sediments, *Analytical Methods in Oceanography, Advances in Chemistry Series No. 147*, T.R.P. Gibb, Jr., ed., American Chemical Society, New York, 124 (1975).

MAR 79 D.B. Martin, Determination of strontium-89 and -90 in soil with total sample decomposition, *Analytical Chemistry*, 51 (12), 1968 (1979).

SHA 79 C.W. Sill, F.D. Hindman and J.I. Anderson, Simultaneous determination of alpha-emitting nuclides of radium through californium in large environmental and biological samples, *Analytical Chemistry*, 51 (8), 1307 (1979).

WNB 70 K.M. Wong, V.E. Noshkin and V.T. Bowen, Radiochemical procedures for the analysis of strontium, antimony, rare earths, caesium, and plutonium in seawater samples, *Reference Methods for Marine Radiochemistry Studies*, International Atomic Energy Agency Technical Report Series No. 118, International Atomic Energy Agency, Vienna, 119 (1970).

SRM 4350B

Page 5



INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY
AGENCE INTERNATIONALE DE L'ENERGIE ATOMIQUE
МЕЖДУНАРОДНОЕ АГЕНТСТВО ПО АТОМНОЙ ЭНЕРГИИ
ORGANISMO INTERNACIONAL DE ENERGIA ATOMICA

WAGRAMERSTRASSE 5, P.O. BOX 100, A-1400 VIENNA, AUSTRIA, TELEX: 1-12645, CABLE: INATOM VIENNA, TELEPHONE: 2360/EXT.

IN REPLY PLEASE REFER TO:
PRIERE DE RAPPELER LA REFERENCE:

LAB/243

April 1984

CERTIFIED REFERENCE MATERIAL
IAEA/SOIL-6

Certified content of radionuclides

(Reference Date: 30 January 1983)

Radionuclide	Content* pCi/kg	Confidence interval** pCi/kg
Cesium-137	1450	1390 - 1565
Plutonium-239	28	26 - 30
Radium-225 ***	2160	1880 - 2525
Strontium-90	820	660 - 856

* expressed on dry-weight basis (constant weight at 105°C)

** at a significance level of 0.05

*** Printing error, please correct to Radium-226

Description of material

The soil (topsoil to a depth of 10cm) was collected near Ebensee in Upper Austria (Oberösterreich) at an altitude of 1100 m above sea level. The fraction of the material passing through a 1 cm sieve was taken, heated at 450°C to destroy organic matter, crushed, ground and homogenized for 12 hours in a concrete-mixer. A sieve analysis showed the following grain size distribution:

Grain size in μm :	%
160 - 250	0.2
125 - 160	0.4
100 - 125	0.7
71 - 100	4.1
below 71	94.6

Certificado 6 Muestra de referencia IAEA SOIL-6.

The approximate general composition of the material is as follows:

Al ₂ O ₃	8.9%	Na ₂ O	0.6
CaO	22.9%	SO ₃	0.3%
Fe ₂ O ₃	3.7%	SiO ₂	38.5%
K ₂ O	2.9%	TiO ₂	0.5%
MgO	1.9%	Loss, on ignition (900°C)	20.5%

The homogeneity was checked by determining the activity of ¹³⁷Cs and ⁴⁰K in twenty bottles chosen at random. It was found that the results did not differ significantly and that the material could be considered homogeneous at a confidence level of 0.95 for the sample weight equal or larger than 250g.

Establishing of certified values

The basis for establishing the certified concentration values was the interlaboratory comparison organized by the IAEA in 1983. The median values and their confidence intervals, calculated for the intercomparison results, were accepted as certified values if they fulfilled some test criteria. In general, the test criteria were based on the following data: reasonable confidence interval of the median depending on a concentration level, number of results, number of analytical methods used, agreement between the results obtained by various methods, and number of outlying results.

The exact description of results of the intercomparison and of the criteria used for their qualification may be found in the Report No. IAEA/RL/111, April 1984.

Important note

The analysts using the Certified Reference Material IAEA/SOIL-6 are kindly requested to communicate their meaningful analytical results on this material to:

Analytical Quality Control Service
International Atomic Energy Agency
Laboratory Seibersdorf
P.O.Box 100, A-1400 Vienna, Austria

These results can be used in the future for the updating of the certified values which are the best estimates as of April 1984.