



Trabajo Fin de Grado en Física

Datación de sedimentos y evaluación de la tasa de acumulación sedimentaria mediante el análisis de la radiactividad de ^{210}Pb y ^{137}Cs .

Autor: Sara Pérez Avelleira

Director: Ángel Mañanes Pérez

Lugar de trabajo: Departamento de Física Moderna

Índice

Resumen.....	4
Abstract	4
1.Introducción	5
1.1.Datación por técnicas radiométricas	5
1.2.Objetivos del trabajo.....	5
1.3.Descripción del área geográfica	6
1.4.Procedimiento y modelo.....	6
2.Metodología. Detectores de radiación	7
2.1.Fenómenos de interacción radiación-materia	7
2.1.1.Absorción fotoeléctrica	7
2.1.2.Dispersión Compton	7
2.1.3.Producción de pares.	7
2.2.Propiedades generales de los detectores de radiación	9
2.2.1.Resolución de la energía. Factor Fano.	9
2.2.2.Eficiencia	10
2.2.3.MDA.....	10
2.3.Detectores de radiación gamma y rayos X.....	11
2.3.1.Detector de centelleo	11
2.3.1.1.Detector de centelleo de NaI(Tl)	13
2.3.2.Detector semiconductor.....	14
2.3.2.1.Detector semiconductor de Germanio ultrapuro	16
2.4.Espectrometría gamma.....	16
2.4.1.Calibrado en energías	18
2.4.3.Análisis de la Resolución	25
2.4.4.Cálculo de la actividad	26
3.Datación de sedimentos por técnicas radiométricas	27
3.1.Datación usando el método de ^{210}Pb en exceso.....	27
3.1.1.Ciclo del ^{210}Pb soportado y en exceso.	28
3.2.Modelos matemáticos aplicados a la datación de sedimentos	29
3.2.1.Modelo de Concentración inicial constante (CIC. Constant Initial Concentration)	30
3.2.2.Modelo de Velocidad de aporte constante (CRS. Constant Rate Supply)	31
3.2.3.Otros modelos	32
3.3.Datación por ^{137}Cs	33
4.Aplicación al estuario de San Pedro del Mar (playa de la Maruca)	34
4.1.Extracción y preparación de las muestras.....	34
4.2.Espectrometría gamma.....	34
4.1.1. Comparación entre los dos detectores.....	35
4.3.Obtención de los perfiles de actividad.....	37
4.4.Discusión sobre los resultados.....	40
4.5.Aplicación de los modelos CRS y CIC al perfil obtenido	41
5.Conclusiones	42

Resumen

Para estudiar, con fines de datación, la presencia de diferentes isótopos radiactivos, naturales y artificiales, en sedimentos, se ha realizado un estudio de las propiedades de un detector de centelleo de NaI(Tl) y de un detector semiconductor HPGe, haciendo hincapié en el calibrado en energías y en la medida de la resolución y de la eficiencia absoluta de ambos equipos.

A la vista de las limitaciones que presenta el detector de centelleo, se ha medido la presencia de diferentes isótopos radiactivos mediante espectrometría gamma de alta resolución, utilizando un detector de HPGe, en un conjunto de muestras obtenidas mediante una cata de sedimentos a distintas profundidades en dos zonas del estuario de San Pedro del Mar (La Maruca, Santander).

El estudio de los diferentes elementos, naturales y artificiales, presentes en los sedimentos, nos ha permitido la aplicación del método de datación utilizando el ^{210}Pb en exceso (natural) y el ^{137}Cs (antropogénico) como trazadores.

Por último, se han analizado los diferentes modelos aplicables a las medidas realizadas con el fin de estudiar la tasa de acumulación sedimentaria. El primer modelo (CIC: Constant Initial Concentration) supone una concentración inicial de ^{210}Pb en exceso constante. El segundo modelo, (CRS: Constant Rate Supply) supone una velocidad de aporte constante de ^{210}Pb en exceso.

Como resultado principal del trabajo, hemos conseguido obtener la evolución temporal de la tasa de acumulación sedimentaria para los últimos 150 años, tasa que presenta un crecimiento que parece alcanzar un máximo alrededor de 1980.

Abstract

To study with dating purposes the presence of different radioactive, natural and artificial, isotopes in sediments, it was performed a study of the properties of a NaI(Tl) scintillation detector and a HPGe semiconductor detector, emphasizing on energy calibration and the measurement of the resolution and the absolute efficiency of both systems.

It was measured the presence of different radioactive isotopes by high resolution gamma spectrometry using a HPGe detector in a set of samples obtained from two cores of sediments at different depths in two areas of the estuary of San Pedro del Mar (La Maruca, Santander).

The study of the activities of different elements, natural and artificial, in the sediments, has allowed us to apply the method of dating using the excess ^{210}Pb (natural) and the ^{137}Cs (anthropogenic) as tracers.

Finally, the measurements have been analyzed using two different models in order to study the accumulation rate of sediments. The first model (CIC: Constant Initial Concentration) involves a constant initial concentration of excess ^{210}Pb . The second model (CRS: Constant Rate Supply) assumes a constant supply of excess ^{210}Pb .

As the main result of our work, we have obtained the time evolution of the accumulation rate for the last 150 years. This rate shows a growing trend with a maximum around 1980.

1. Introducción

1.1. Datación por técnicas radiométricas

La datación radiométrica es un procedimiento empleado para determinar la edad absoluta de rocas, minerales y restos orgánicos. Se trata de una herramienta comúnmente utilizada en estudios ambientales, ya que permite el seguimiento de procesos tanto naturales como artificiales. [1]

La datación de sedimentos depositados en el fondo marino posee gran interés ya que proporciona información acerca del impacto ambiental de la actividad humana en el medio natural.

Mediante esta técnica es posible calcular las tasas de acumulación sedimentaria, es decir, la velocidad a la que se depositan sustancias en sistemas acuáticos, haciendo posible diferenciar las modificaciones en los perfiles de sedimentación debidas a procesos antrópicos y las debidas a causas naturales.

El fundamento de la datación radiométrica es la desintegración radiactiva. Cuando una cantidad de material radiactivo se incorpora a un material geológico, éste se desintegra con una tasa constante de decaimiento proporcional a su cantidad ($\frac{dN(t)}{dt} = -\lambda N(t)$). El tiempo en el que la cantidad de dicho elemento radiactivo se reduce a la mitad, es decir, su “vida media”, es un valor que ya se ha medido con gran precisión, de tal manera que se puede relacionar dicho valor con la edad geológica del material.

Esta técnica se realiza desde hace años usando unos u otros isótopos radiactivos naturales o artificiales presentes en el ambiente, en función de la escala de tiempo que se desee estudiar. Para lapsos de tiempo correspondientes a las últimas décadas, los de mayor impacto realizado por el hombre, los métodos que proporcionan los resultados más precisos son los basados en el ^{137}Cs y el ^{210}Pb cuyos periodos de semidesintegración (30.07 y 22.3 años respectivamente) los hacen adecuados para ser utilizados como trazadores.

Inicialmente, la datación mediante el plomo se realizaba por medio de la separación y concentración de plomo en las muestras, y por la medida de la emisión de partículas α y β . En nuestro trabajo, la cantidad de ^{210}Pb ($E_\gamma = 46.5 \text{ keV}$) se analizará mediante espectrometría gamma, debido a que este isótopo, perteneciente a la cadena radiactiva natural del ^{238}U , es un emisor gamma, como puede verse en el esquema de desintegración de la Figura 0.

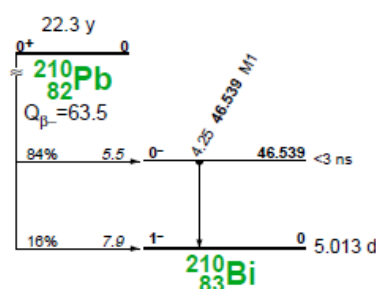


Figura 0. Esquema de decaimiento del ^{210}Pb . [2]

1.2. Objetivos del trabajo

El objetivo de este trabajo es el estudio de las tasas de acumulación sedimentaria existentes en dos puntos cercanos del estuario de San Pedro del Mar (playa de la Maruca) (Localización: 43°28'36.2"N 3°50'30.4"W) y el cálculo de la edad de cada una de las capas extraídas en un

1.4. Procedimiento y modelo

El método consiste en extraer dos testigos, de 30 y 50 *cm* respectivamente, en la zona explicada anteriormente. Preparar posteriormente las muestras, para lo que se ha dividido cada testigo en diez tramos. Calibrar en energía y eficiencia los detectores de HPGe semiconductor y NaI(Tl) de centelleo para obtener los perfiles de actividades de los diferentes isótopos necesarios mediante espectroscopía gamma. A los resultados obtenidos se les aplicarán dos modelos matemáticos diferentes (CIC y CRS) para su datación y cálculo de tasas de acumulación sedimentaria.

En el segundo apartado de este trabajo se va a analizar el fenómeno de la detección de radiación, explicando los mecanismos de interacción de la radiación con la materia en los que se basa el funcionamiento de los detectores, así como las principales características de los detectores utilizados.

En el tercer apartado se va a explicar detalladamente el método utilizado para la datación mediante ^{210}Pb en exceso, así como los modelos matemáticos a aplicar a los resultados obtenidos. También se hará una breve explicación del método de datación por ^{137}Cs .

En el cuarto apartado se va a proceder a la explicación del método seguido para la preparación de las muestras, obtención de los perfiles de actividad específica y aplicación de los modelos explicados al perfil obtenido.

Por último, en el quinto apartado se realiza una pequeña síntesis de los resultados obtenidos y las conclusiones.

2. Metodología. Detectores de radiación

Los detectores de radiación utilizan los fenómenos de interacción de la radiación con la materia para detectar las partículas de radiación. Es por este motivo que conocer en qué consisten estos fenómenos es clave para entender el funcionamiento de los detectores.

2.1. Fenómenos de interacción radiación-materia

En el rango de energías que nos interesa en este trabajo (*keV – MeV*) existen tres mecanismos de interacción entre los rayos gamma y la materia, los cuales tienen un papel importante en la medición de radiación dentro de los detectores. Estos tres mecanismos son la absorción fotoeléctrica, la dispersión Compton y la producción de pares. En todos estos procesos se produce una transferencia total o parcial de la energía del fotón de rayos gamma a los electrones del material en cuestión, de manera que el fotón cambia su trayectoria o desaparece.

2.1.1. Absorción fotoeléctrica

En el proceso de absorción fotoeléctrica, toda la energía del fotón incidente es cedida en su totalidad a un electrón ligado de un átomo del material que resulta expulsado del mismo con una energía cinética y el fotón desaparece completamente. Este electrón, por colisiones, cede su energía a otros electrones produciendo una excitación de múltiples electrones del material. El efecto final es que toda la energía del fotón es transmitida a los electrones del material.

Este mecanismo es el dominante para rayos gamma (o rayos X) cuando la energía de los rayos es relativamente baja (KeV).

2.1.2. Dispersión Compton

En un proceso de dispersión Compton, el fotón incidente es desviado un determinado ángulo con respecto a su dirección inicial, transfiriendo parte de su energía al electrón, que se supone inicialmente en reposo. Debido a que todos los ángulos de dispersión son posibles, la energía transferida puede variar desde cero hasta una energía máxima que es gran parte de la energía inicial del fotón. A diferencia del efecto fotoeléctrico, que necesita la presencia del núcleo para que se conserve el momento y la energía, el efecto Compton puede ocurrir también en electrones no ligados a los núcleos. El efecto Compton constituye el mecanismo de absorción más importante para radiación gamma con energía intermedias ($0.5 - 10 MeV$).

2.1.3. Producción de pares.

Cuando la energía del rayo gamma es superior al doble de la energía asociada a la masa en reposo del electrón ($2m_0c^2 = 2 \cdot 511keV = 1022keV$), entonces el proceso de producción de pares se hace posible. En esta interacción, el fotón incidente, en las proximidades de un núcleo atómico, desaparece y es reemplazado por un par electrón-positrón. La energía del fotón en exceso se transforma en energía cinética del par.

La creación de pares está estrechamente ligada con la aniquilación electrón-positrón. De las dos partículas producidas, el electrón cede su energía en el material mientras que el positrón va perdiendo su energía por colisiones sucesivas hasta quedar prácticamente en reposo. En ese momento, puede interactuar con un electrón desapareciendo ambas partículas y dando lugar a dos fotones, cada uno con energía de $0.511 MeV$, que se mueven en direcciones opuestas. Esta radiación secundaria se conoce como radiación de aniquilación, y acompaña normalmente a la absorción de rayos gamma de alta energía por la materia.

Cada uno de los procesos anteriores está caracterizado por una sección eficaz microscópica $\sigma_l(E, Z)$, que depende tanto de la energía del fotón E como del material absorbente Z . Esta sección eficaz es una indicación de la probabilidad de que ocurra tal suceso y se mide en *barns* ($1 barn = 10^{-24}cm^2$). En lugar de las secciones eficaces se utiliza el coeficiente de atenuación lineal $\mu(E, z)$, en cm^{-1} :

$$\mu(E, z) = \rho_A \cdot (\sigma_F + \sigma_C + \sigma_P) \quad (1)$$

donde ρ_A es la densidad atómica del material, y F, C, P, se refieren a absorción fotoeléctrica, dispersión Compton y producción de pares respectivamente, de manera que $\sigma_l = \sigma_F + \sigma_C + \sigma_P$.

El coeficiente de atenuación másico vendrá dado por $\frac{\mu(E, z)}{\rho}$ en cm^2/g , siendo ahora ρ la densidad del material. Este coeficiente dará idea de la importancia relativa de los tres procesos en función de la energía del rayo gamma, y será diferente dependiendo del detector utilizado. Esto es lo que se encuentra representada en las siguientes figuras:

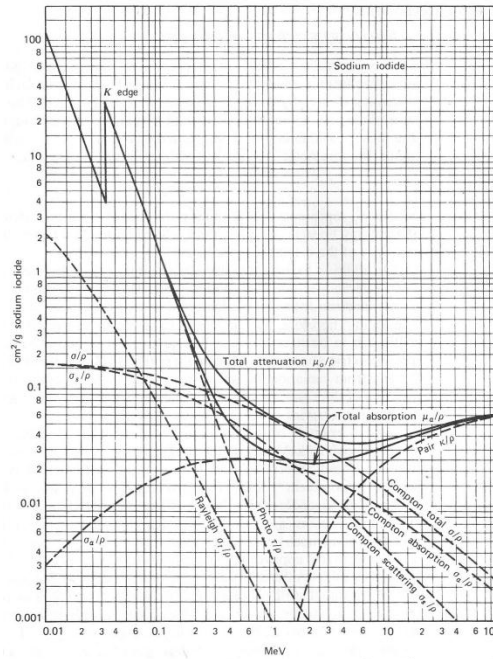


Figura 2. Dependencia de la energía de los procesos de interacción de la radiación gamma con la materia en yoduro de sodio. Se representan las diferentes contribuciones al coeficiente de atenuación másico. [1]

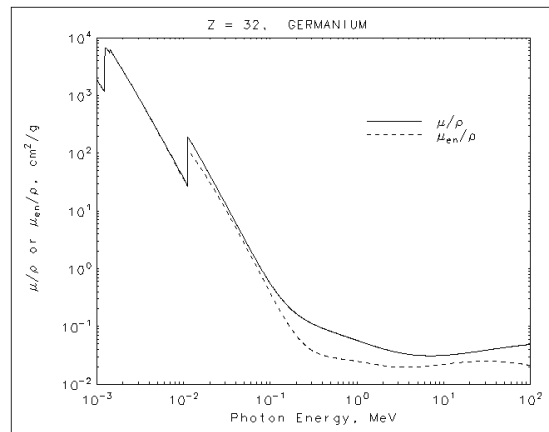


Figura 3. Atenuación total de la energía producida en germanio en función de la energía de los fotones. [5]

En la Figura 4, se muestra el espectro medido para un fuente de ^{137}Cs con un detector de HPGe y con un centelleador de NaI(Tl). Tanto la absorción fotoeléctrica como la dispersión Compton y contribuyen a la respuesta observada; sin embargo, no es posible que el proceso de producción de pares ocurra, debido a la baja energía de los fotones (32 keV y 662 keV). El esquema de decaimiento del ^{137}Cs se incluye también en la figura, donde hay que tener en cuenta que los rayos X del Bario (32 keV) se producen después de que la energía del estado excitado del núcleo de Bario se transfiera a uno de los electrones de la corteza del átomo (conversión interna), y otro electrón cubra el hueco producido en la capa K del átomo de Bario.

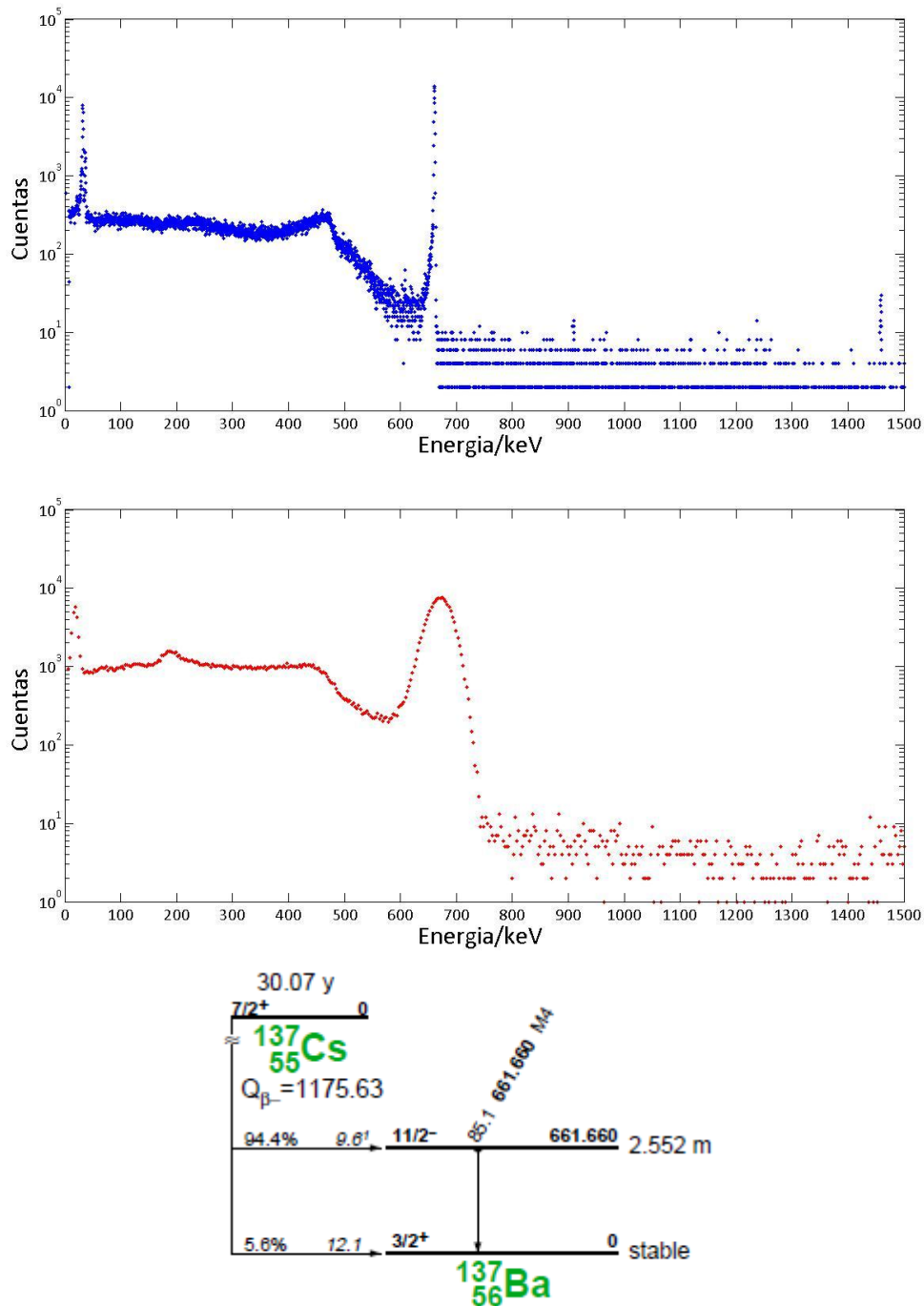


Figura 4. Espectro de emisión gamma para una muestra de ^{137}Cs para un detector de HPGe en azul y para un detector de NaI(Tl) en rojo, así como el esquema de decaimiento del ^{137}Cs [2].

Si nos fijamos en la respuesta de los detectores de la Figura 4, el fotopico de mayor energía (662 keV) es causado por la absorción total de la energía de los fotones correspondientes. Dicha absorción es predominantemente por efecto fotoeléctrico para el NaI(Tl), pero en el caso del detector de HPGe la contribución al pico está dominada por múltiples efectos Compton con un efecto fotoeléctrico final. A la izquierda del fotopico se tiene un borde denominado “borde Compton”, a partir del cual se extiende el continuo Compton. Este continuo está asociado a una única colisión Compton del fotón incidente cuando el fotón resultante escapa del detector. Debido a que todos los ángulos de dispersión θ son posibles,

el continuo Compton se extenderá desde $E = 0$ (cuando $\theta = 0^\circ$) hasta el valor máximo de la energía E que se puede transmitir al electrón, el cual ocurre para $\theta = \pi$.

El fotopico de menor energía, a 32 keV, es también debido a efectos fotoeléctricos de rayos X (conversión interna) con electrones del detector. En la conversión interna, la energía de excitación del núcleo se transfiere a un electrón de las capas más internas. El electrón será arrancado del átomo y el hueco que deja será ocupado por otro electrón de las capas más externas, con emisión de rayos X. La energía de estos rayos X podrá tener diferentes valores en función de la capa en la que se encuentren los electrones, ya que la energía será la diferencia entre la energía de excitación del núcleo y la energía de ligadura del electrón de conversión [6].

A la vista de la figura anterior, se puede representar en qué medida contribuyen los tres mecanismos de interacción a la fracción total de la energía del pico en el caso del HPGe:

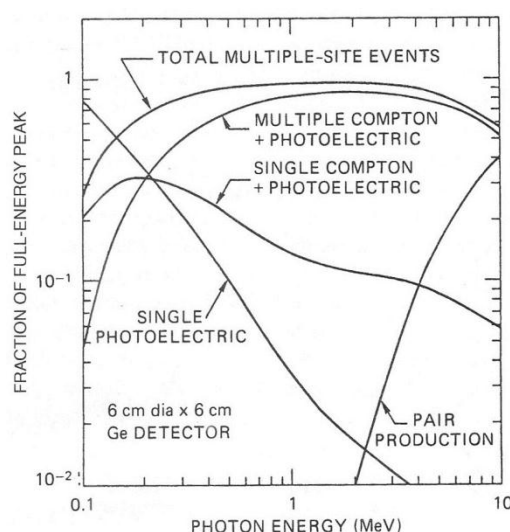


Figura 5. Fracciones de la energía total del pico contribuido por diversos mecanismos de pérdida de energía en un detector coaxial de HPGe de 6 cm x 6 cm. La absorción del fotón de rayos gamma en una sola interacción fotoeléctrica predomina sólo para energías por debajo de aproximadamente 140 keV [3].

Por otro lado, se observan bordes de absorción en las Figuras 2 y 3 en la región de bajas energías. Concretamente estos picos ocurren para energías de los rayos gamma que se corresponden con energías de enlace de los electrones en las diversas capas del átomo.

En el caso de la Figura 2, se corresponde con la energía de enlace del electrón de la capa K, del elemento de mayor Z, el Iodo. Para valores de la energía del rayo gamma ligeramente por encima de este valor, la energía del fotón es suficientemente alta como para producir efecto fotoeléctrico y expulsar a un electrón de la capa K. Si la energía es por el contrario inferior a este valor, este proceso ya no es energéticamente posible y por lo tanto la probabilidad de interacción disminuye bruscamente.

Estos bordes de absorción ocurren también para energías más bajas (correspondientes a las capas L, M,...) como se observa en la Figura 3.

2.2. Propiedades generales de los detectores de radiación

2.2.1. Resolución de la energía. Factor Fano.

Una de las características principales que caracterizan a los detectores de radiación es su capacidad para discriminar entre dos radiaciones de energía similar, esto es, la mínima diferencia de energía que es capaz de detectar.

Si suponemos un detector ideal y lo sometemos a una radiación monoenergética, éste debería presentar como respuesta para el espectro de energía una delta de Dirac, es decir, el espectro se reduciría a un solo valor de la energía que contuviera a todos los sucesos detectados.

En la práctica, esta línea se ensanchará como consecuencia tanto de la vida media finita de los estados (anchura natural) como del fenómeno de detección (producción de portadores, recolección de los portadores, conversión de la señal en un pulso de voltaje y sistema electrónico de análisis de impulsos) adoptando una forma normalmente gaussiana más o menos deformada. Así, se define la resolución energética de un detector como:

$$R = \frac{FWHM(E)}{E} \quad (2)$$

Siendo $FWHM(E)$ (Full Width at Half Maximun) la anchura a media altura de la curva de Gauss correspondiente a una de las líneas monoenergética de energía E . [6]

Para que dos energías E_1 y E_2 puedan ser diferenciadas por el equipo, tendría que ocurrir:

$$\begin{aligned} \Delta E \cong E_1 - E_2 &\geq \frac{1}{2}FWHM(E_1) + \frac{1}{2}FWHM(E_2) = \\ &= \frac{1}{2}[E_1 \cdot R(E_1) + E_2 \cdot R(E_2)] \cong \frac{E_1 + E_2}{2} R(\bar{E}) \end{aligned} \quad (3)$$

Si se tiene una resolución $R = K \frac{1}{\sqrt{E}}$, como es el caso del detector de NaI(Tl), tendremos que para distinguir dos energías próximas su diferencia ha de ser:

$$\Delta E \geq K\sqrt{E} \quad (4)$$

A la vista de la expresión anterior (3), se observa que a mayor resolución (valor de R más pequeño), el sistema de medida será capaz de discernir entre energías más cercanas entre sí, dando lugar a un enorme cambio en la calidad de la información que se puede extraer de su correspondiente espectro.

Considerando la hipótesis gaussiana para la forma del pico, se tiene que $FWHM = \sqrt{2\ln 2}\sigma = 2.35\sigma$, donde σ es la desviación estándar del pico correspondiente. El número de ionizaciones producidas, N , será, siendo w la energía necesaria para producir una ionización. Si la partícula pierde toda su energía, entonces se cumple que $\sigma^2(N) = F \cdot N$, siendo F el factor de Fano. De esta manera se puede reescribir la expresión (2) de la siguiente manera: [3]

$$R = 2.35 \sqrt{\frac{F \cdot w}{E}} \quad (5)$$

El factor de Fano depende del tipo de material detector y del método de detección. Los detectores centelleadores tienen un factor de Fano de valor $F \approx 1$, mientras que para los de ionización en gas y semiconductores su valor es inferior $F \leq 0.01$, lo que implica una mayor resolución para éstos últimos.

2.2.2. Eficiencia

La eficiencia es el segundo parámetro importante para caracterizar un detector.

Un detector generalmente no responde al paso de todas las partículas que lo atraviesan. El cociente entre el número de partículas detectadas y el número de partículas emitidas por la muestra se denomina eficiencia total o absoluta de un detector de partículas: [3]

$$\varepsilon_{abs} = \frac{n^{\circ} \text{ partículas detectadas}}{n^{\circ} \text{ de partículas emitidas por la muestra}} \quad (6)$$

Es necesario señalar que para el cálculo de las eficiencias nos restringimos únicamente al número de partículas detectadas en el fotopico, y no las totales registradas por el detector.

La eficiencia absoluta no depende únicamente de las propiedades del detector, sino también de la disposición geométrica del sistema fuente-detector, así como de la geometría de la propia fuente.

La eficiencia intrínseca es particularmente importante pues da una idea de cuál es la capacidad de detección de nuestro sistema, y es un poco más independiente de la geometría muestra detector.

La eficiencia intrínseca se define como:

$$\varepsilon_{int} = \frac{n^{\circ} \text{ partículas detectadas}}{n^{\circ} \text{ de partículas incidentes sobre el detector}} \quad (7)$$

2.2.3.MDA

Cuando las muestras que se desean medir presentan niveles muy bajos de radiación (como es el caso de muestras ambientales) se hace necesario establecer parámetros que nos permitan diferenciar entre las fluctuaciones estadísticas de la radiación de fondo y la radiación proveniente de las muestras de manera confiable.

La MDA permite valorar si la actividad neta obtenida para una muestra puede considerarse como proveniente de dicha muestra en lugar de ser una fluctuación del fondo ambiental. [8]

Así, la actividad mínima detectable (MDA: Minimun Detectable Activity) es la actividad que, cuando está presente en una muestra, produce una tasa de recuento que se detecta con un nivel de confianza determinado (95%), es decir, que se puede considerar por encima del fondo con esa probabilidad.

El valor de la MDA dependerá por tanto de las cuentas medidas en el fondo y de los tiempos de medida. Si se tienen por ejemplo medidas de la tasa de cuentas netas n_s de una muestra dada, de manera que estas cuentas se correspondan al valor de la tasa de cuentas medidas totales (muestra + fondo) menos la tasa de cuentas medidas para el fondo: $n_s = n_t - n_f$, y los tiempos de medida para las cuentas totales y para el fondo son respectivamente t_t y t_f , en este caso, para poder descartar que se trate de una fluctuación del fondo, n_s tendrá que ser igual o superior a un valor δ_1 definido como [9]:

$$\delta_1 \equiv K_1 \cdot \sigma_s = K_1 [\sigma_t^2 + \sigma_f^2] \quad (8)$$

Siendo K_1 el parámetro que define el intervalo de confianza y las desviaciones estándar de las tasas del fondo y del total son: $\sigma_f^2 = \frac{n_f}{t_f}$ y $\sigma_t^2 = \frac{n_t \cdot t_t}{t_t^2} = \frac{n_t}{t_t}$.

De esta manera, (tomando $K_1 = 1.645$) si $n_s > \delta_1$ la muestra será radiactiva con probabilidad del 95%, y habrá una probabilidad del 5% de que no sea radiactiva. De la misma manera, si $n_s < \delta_1$ la muestra será no radiactiva con probabilidad del 95%, y habrá una probabilidad del 5% de que sea radiactiva.

El valor umbral para que se pueda considerar que una muestra es activa con probabilidad del 95% y con actividad δ_2 :

$$\delta_2 \equiv \delta_1 + K_2 \cdot \sigma_s(\delta_2) \quad (9)$$

donde σ_s es ahora $\sigma_s(\delta_2) = \left[\frac{n_f}{t_f} + \frac{\delta_2 + n_f}{t_t} \right]^{1/2}$. Despejando δ_2 tenemos:

$$MDA = \delta_2 = \delta_1 + \frac{1}{2} \frac{K_2^2}{t_t} + K_2 \left[\frac{K_2^2}{4t_t^2} + \frac{\delta_1}{t_t} + n_f \left(\frac{1}{t_f} + \frac{1}{t_t} \right) \right]^{1/2} \quad (10)$$

Si en la expresión anterior tomamos $t_t = t_f = t$, $K_1 = K_2 = K$ y suponemos $8n_f t \gg K^2$, tenemos:

$$MDA = \delta_2 = 2\delta_1 \approx \left[\frac{K^2 + 2K\sqrt{2n_f t}}{t} \right] \quad (11)$$

Esta aproximación se corresponde con el cálculo que realiza el detector de HPGe para la MDA. La ecuación (11) muestra que la actividad mínima detectable depende de la tasa del fondo y del tiempo de cuenta, disminuyendo al aumentar t y disminuyendo al disminuir n_f .

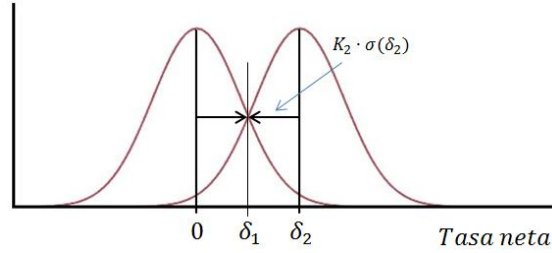


Figura 6. Se representan los valores umbrales δ_1 y δ_2 .

2.3. Detectores de radiación gamma y rayos X

Los detectores de radiación utilizan los fenómenos de interacción de la radiación con la materia de detectar y medir la radiación incidente. El detector transforma el efecto generado por la interacción en una señal medible (ya sea luz, pulsos eléctricos, etc. dependiendo del tipo de detector) de manera que ésta puede ser tratada posteriormente para obtener la información deseada.

2.3.1. Detector de centelleo

El funcionamiento de un detector de centelleo se basa en la propiedad que poseen ciertos materiales para emitir luz visible cuando sobre ellos incide una radiación ionizante. La luz emitida (llamada luz centelleadora) se hace pasar por un fotomultiplicador que la transforma en corriente eléctrica que puede ser medida. [10]

Por tanto, un detector de centelleo se compone de tres partes principales: un material centelleador, un fotomultiplicador y un acoplamiento óptico (que permite acoplar el fotomultiplicador con el cristal luminiscente). Estos tres elementos se encuentran protegidos de la luz ambiental por una envoltura opaca.

Un material centelleador ideal es aquel que cumple las siguientes propiedades: [3]

1. Convierte los fotones de alta energía (keV-MeV) en luz detectable (eV) con una alta eficiencia.
2. La conversión es lineal, la cantidad de luz por el material es proporcional a la energía depositada en él en un rango tan grande como sea posible.
3. El medio es transparente a la longitud de onda de su propia emisión para una buena colección de luz.
4. El tiempo de decaimiento de la luminiscencia inducida debería ser lo suficientemente corto como para que puedan ser generados pulsos rápidos de señal.
5. El material debe ser de buena calidad óptica y con sujeción a fabricar en tamaños lo suficientemente grandes como para ser de interés como un detector práctico.

6. Su índice de refracción debe estar cercano al del vidrio (~ 1.5) para permitir el acoplamiento eficiente de la luz de centelleo a un tubo fotomultiplicador.

Existen gran cantidad de materiales centelleadores, ninguno de los cuales es capaz de reunir simultáneamente todas estas propiedades. De manera que la elección de un material u otro dependerá de cuáles de estos factores son más favorables para el tipo de trabajo que se desee realizar. El más empleado dentro de los cristales inorgánicos es el ioduro de sodio debido a su gran transparencia, y es el que emplearemos en este trabajo.

Para entender el funcionamiento de un centelleador para este tipo de cristales hemos de recurrir a la estructura de bandas del material. En la figura 7 se muestran los niveles de energía dentro de la red. Los electrones de la banda de valencia se encuentran ligados, mientras que los electrones de la banda de conducción son libres y pueden moverse a lo largo del material. Entre ambas bandas existe la llamada banda prohibida, dentro de la cual los electrones no pueden encontrarse en cristales puros. Dentro de esa banda prohibida están los niveles electrónicos asociados tanto a las impurezas como a otros defectos de la red cristalina (trampas).

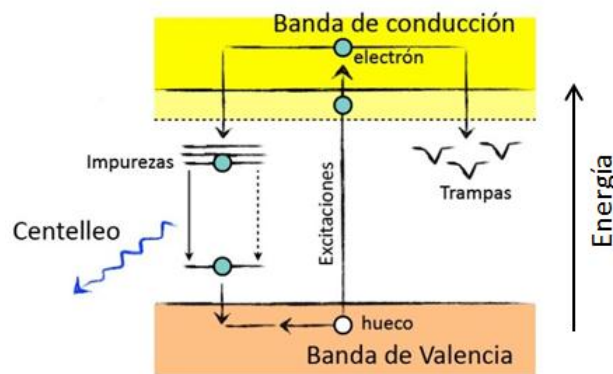


Figura 7. Estructura de bandas de energía de un centelleador cristalino activado [11].

Cuando el sistema absorbe energía, esto puede provocar que un electrón de la banda de valencia atraviese el gap y pase a la banda de conducción, dejando un hueco en la banda de valencia. Si el cristal es puro, el proceso de desexcitación con emisión de un fotón no se produce. Sin embargo, si se añaden pequeñas cantidades de impurezas, llamadas activadores, la estructura de bandas se modifica, creándose nuevos estados dentro de la banda prohibida. Ahora, la energía es más pequeña que la de la banda prohibida completa y por tanto la transición sí se produce, dando lugar a la emisión de fotones. Esto es el proceso de centelleo.

De esta manera, cuando una partícula cargada atraviese el detector, hará que un gran número de electrones se exciten a la banda de valencia, formando así un gran número de pares electrón-hueco. El hueco positivo será rápidamente conducido a la posición de un activador y lo ionizará. Mientras tanto, el electrón libre se moverá a través del cristal hasta que encuentre un activador ionizado. En este momento el electrón puede descender al sitio de la impureza, convirtiendo a la impureza en neutra, la cual puede tener su propio conjunto de estados de energía excitados. Estos estados están ilustrados en la Figura 7. Si el activador ha sido correctamente elegido, esta transición puede producir fotones en el rango de energía visible.

El funcionamiento de un centelleador no sería posible sin el tubo fotomultiplicador, el cual convierte la extremadamente débil luz de centelleo (unos pocos cientos de fotones) en un pulso de corriente medible sin añadir una gran cantidad de ruido aleatorio a la señal.

El fotomultiplicador está compuesto de una capa fotosensible llamada fotocátodo, que convierte la luz de centelleo en unos pocos electrones, acoplada a unos electrodos (dínodos) que multiplican la cantidad de electrones, y de un electrodo (ánodo) que recoge la señal final. De esta manera se consigue, en la medida de lo posible, que la amplitud de la señal registrada en el ánodo sea proporcional a la cantidad de radiación que interacciona con el material centelleador.

La estructura simplificada de un tubo fotomultiplicador típico está ilustrada en la Figura 8:

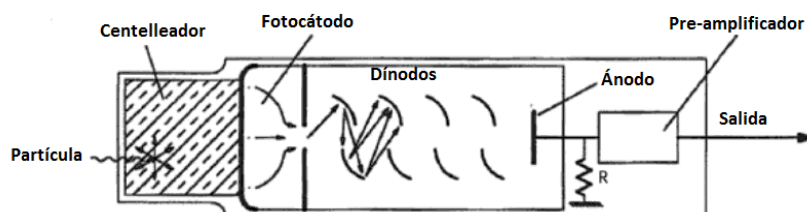


Figura 8. Esquema de la estructura de un fotomultiplicador donde se muestran los diferentes componentes del dispositivo. La señal luminosa produce en el fotocátodo las emisiones de electrones que a través de los dínodos se van multiplicando hasta alcanzar el ánodo [10].

2.3.1.1. Detector de centelleo de NaI(Tl)

El descubrimiento del ioduro de sodio activado con talio produjo una gran mejora en cuanto al rendimiento luminoso de los centelleadores, siendo su rendimiento el más alto conocido. De esta manera su respuesta es muy cercana a ser lineal para la mayor parte del rango de energías. El tiempo de decaimiento dominante del pulso del centelleador, sin embargo, es demasiado largo para aplicaciones que requieran una velocidad de cuentas alta.

2.3.2. Detector semiconductor

Los detectores centelleadores constan de muchos pasos que deben llevarse a cabo desde la llegada de radiación incidente hasta la generación de la señal eléctrica correspondiente. Esto conlleva muchos eventos ineficientes, de manera que la resolución de la energía se resiente enormemente, apareciendo una limitación en la resolución que no se puede eliminar.

El uso de detectores semiconductores consigue eliminar este límite en la resolución aumentando el número de portadores de información por pulso más que ningún otro detector. Así, mediante este tipo de detectores se consigue la mayor resolución de energía conseguida hasta la fecha.

Un material semiconductor es un elemento que se comporta como un conductor o como un aislante dependiendo de diversos factores, como por ejemplo el campo eléctrico o magnético, la presión, la radiación que le incide, o la temperatura del ambiente en el que se encuentre. Estos materiales presentan una estructura de bandas en la cual se tiene a $T=0K$ una banda de

valencia cuyos estados están llenos, y una banda de conducción cuyos estados están vacíos. Entre ambas bandas se tiene una banda de energía prohibida. (Figura 9)

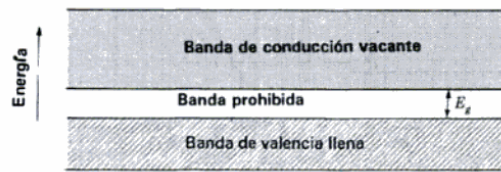


Figura 9. Esquema de la estructura de bandas de un semiconductor a $T = 0$. La energía de la banda prohibida en un material semiconductor es del orden de $E_g = 1\text{eV}$. [12]

Cuando la temperatura es distinta de 0 K, los electrones adquieren suficiente energía como para atravesar la banda prohibida y pasar a la de conducción, creando un hueco (carga positiva) en la banda de valencia.

Ahora bien, si se aplica un campo eléctrico, los electrones y los huecos se moverán en direcciones opuestas, contribuyendo ambos a la conductividad del material.

El tamaño de la banda prohibida determina la cantidad de electrones excitados para una misma temperatura, y por tanto será determinante para la conductividad del material.

Cuando un semiconductor se encuentra dopado con impurezas (ya sea tipo n o tipo p) se crean niveles de energía dentro de la banda prohibida (aceptores o donores) aumentando así el número de huecos y de electrones libres con el consiguiente aumento de la conductividad. Este dopaje puede ser debido a pequeñas concentraciones de impurezas depositadas en el material de manera voluntaria o también involuntaria durante el proceso de purificación.

Cuando se tiene un semiconductor completamente puro (el cual en la práctica es imposible conseguir) todos los electrones de la banda de conducción y todos los huecos de la banda de valencia habrán sido producidos únicamente por excitación térmica. Y se tiene por tanto que el número de electrones es igual al número de huecos ($n = p$).

Para que el material semiconductor funcione como detector de radiación, es necesaria la presencia de un diodo. Un diodo es una unión entre un semiconductor tipo p (con exceso de huecos) y un semiconductor tipo n (con exceso de electrones). Cuando se crea una unión p-n, se forma una región espacial de carga entre los dos materiales, de manera que se produce la difusión de los electrones hacia la parte p y de los huecos hacia la parte n. Así se crea un gradiente de campo eléctrico dentro de la unión, el cual detiene la difusión dejando una región de carga inmóvil, llamada región de agotamiento, volumen activo o zona de vaciado.

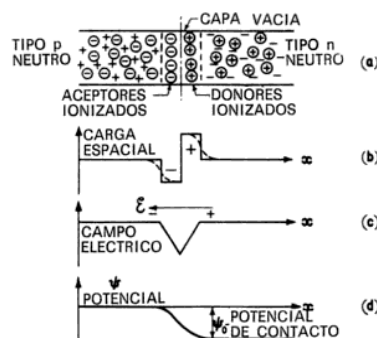


Figura 10. Se observa la densidad de carga, el campo eléctrico y el potencial producidos en una unión p-n.[13]

Cuando la radiación incide sobre el material, da lugar a la aparición de pares electron-hueco en la región de agotamiento a lo largo de su trayectoria. Estos pares serán barridos por el campo eléctrico al que se encuentra sometido el diodo y serán recogidos por los electrodos. Posteriormente se creará una señal eléctrica proporcional a la carga recogida.

Además de una resolución de energía superior, los detectores semiconductores presentan otras características positivas, como son su tamaño compacto, un ritmo relativamente rápido y una anchura que puede ser variada en función del tipo de uso que se le quiera dar.

De los materiales semiconductores disponibles, el silicio proporciona los mejores resultados para medidas de partículas cargadas, mientras que el germanio predomina para medidas de espectrometría de rayos gamma.

2.3.2.1. Detector semiconductor de Germanio ultrapuro

El germanio ultrapuro es aquel que presenta un nivel de impurezas de 10^{10} átomos/cm³. Para su creación, el nivel de impurezas se va reduciendo progresivamente a medida que se calienta localmente el material y se van fundiendo los extremos. Puesto que las impurezas tienden a ser más solubles en germanio fundido que en germanio sólido, éstas son atraídas por la parte fundida. Entonces, las impurezas se barren del material. Después de muchas repeticiones, esta técnica consigue alcanzar el nivel de pureza deseable y debido a ello se consigue aumentar la anchura de la región de agotamiento.

2.4. Espectrometría gamma

La espectrometría gamma consiste en la obtención del espectro de las radiaciones gamma emitidas por los radionucleidos, es decir, el número de fotones emitidos a cada energía, con el fin de identificar los elementos radioactivos de manera fiable.

Esta técnica se puede realizar tanto mediante la utilización del detector de NaI(Tl) como del semiconductor de HPGe. La elección de uno u otro tipo de detector depende de la preferencia entre los dos factores explicados anteriormente: la eficiencia y la resolución. Los detectores de NaI(Tl) presentan mayor eficiencia pero menor resolución que los detectores de HPGe, cuya característica principal es una alta resolución.

En nuestro caso, las primeras mediciones se realizaron con un detector de centelleo de NaI(Tl). Para ello se utilizó el detector de NaI(Tl), un amplificador, un analizador multicanal (MCA) y un PC con el software necesario. Alrededor del detector y la muestra se tiene un blindaje de plomo. El dispositivo experimental es el que se muestra en las Figuras 11 y 12:



Figura 11. Se muestra el detector centelleador de NaI(Tl) dentro del blindaje de plomo, así como una de las muestras colocada en disposición para medir.

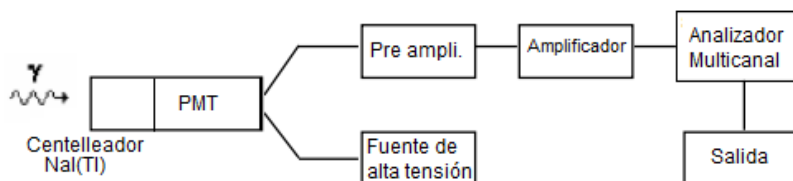


Figura 12. Esquema del sistema experimental asociado al detector de NaI(Tl). [14]

En este tipo de detector, la resolución energética no varía con el tamaño. De esta manera, es posible aumentar las posibilidades de interacción, y por lo tanto la eficiencia, aumentando el tamaño y sin perder por ello resolución.

Para este trabajo también se usó un detector de HPGe, con cuyas medidas ha sido posible realizar un análisis cuantitativo detallado de la presencia de diferentes radionuclidos. El dispositivo experimental presentaba una configuración similar a la del centelleador de NaI(Tl), con la diferencia que se tiene un tanque de nitrógeno líquido con el fin de refrigerar al detector. Este dispositivo se muestra en la Figura 13:

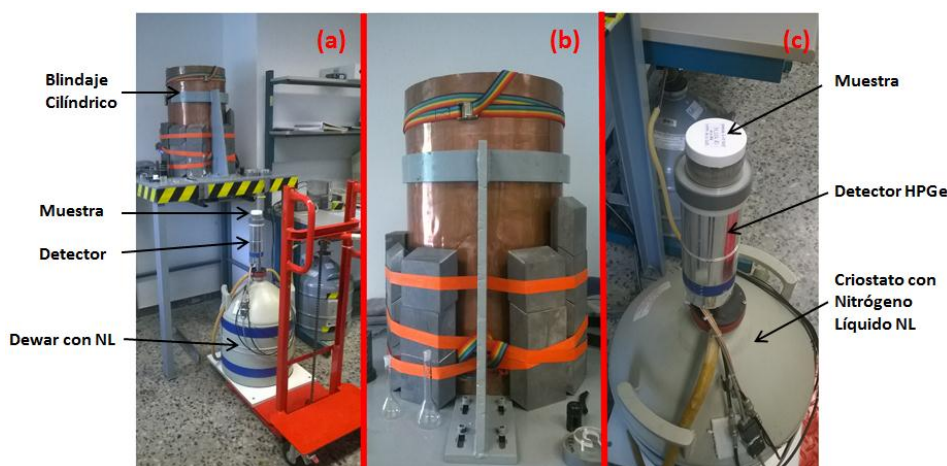


Figura 13. Se muestra el blindaje asociado al detector de HPGe (b), el tanque de nitrógeno líquido colocado bajo el blindaje (a) y una de las muestras colocada sobre el detector en disposición para medir (c).

Se trata de un detector cilíndrico coaxial de HPGe modelo GX1320 de 48 mm de diámetro y 34 mm de altura. Dispone de una ventana de Be de 0.5 mm de espesor a una distancia del detector de 5mm, que mantiene el vacío en el detector para evitar que aumente su temperatura. El detector se encuentra situado en el interior de un blindaje de Pb de 10 cm de espesor, y unido mediante un dedo frío a un recipiente Dewar con nitrógeno líquido.

La presencia de la ventana de Be, un material ligero ($Z=5$), permite que rayos X de baja energía (10-15 keV) puedan llegar al detector de HPGe.

La diferencia entre el número atómico del sodio ($Z=11$), del yodo ($Z=53$) y el del germanio ($Z=32$) hace que el efecto fotoeléctrico tenga mayor peso con respecto a los efectos Compton y producción de pares en el detector de NaI(Tl), por lo que el fotopico será mayor. Por este motivo, el detector de centelleo proporciona una mayor eficiencia de conteo, pero sin embargo una resolución baja. Al contrario que en el detector de germanio que está dotado de una excelente resolución.

En este trabajo se va a hacer una comparación de estos dos parámetros, tomando los espectros de muestras iguales en ambos detectores. De esta manera se podrá comprobar que, en el tipo de muestras que se desean medir, es más importante disponer de una elevada resolución que de una elevada eficiencia, ya que el espectro a estudiar involucra numerosos picos de energías muy cercanas y su diferenciación es una parte fundamental de nuestro trabajo.

2.4.1. Calibrado en energías

El calibrado en energías es un proceso que tiene como finalidad la asignación de un valor de la energía a cada canal o posición de memoria del Analizador Multicanal (MCA). Dicho proceso se realiza con fuentes que emiten fotones de energías conocidas, (energías que abarquen el rango a estudiar en nuestro trabajo) lo cual nos permite correlacionar el número del canal con la energía del fotón. Así, el equipo de detección queda calibrado en energía.

Para el caso del detector de NaI(Tl), realizamos el calibrado a bajas energías con una muestra de ^{137}Cs , que como hemos visto en la figura 4 presenta un pico de rayos X a 32 keV y otro fotón gamma a 662 keV (El pico de ^{210}Pb que nos interesa medir está en 46.54 keV). Posteriormente realizamos una comprobación del calibrado con una muestra de ^{207}Bi .

De esta manera se obtiene el calibrado siguiente:

$$Energía(keV) = -34.957 + 3.043 \cdot C$$

donde C es el canal de energía ($C \leq 1024$ canales para el NaI(Tl)).

En el caso del semiconductor, realizamos el calibrado con una serie de muestras y su comprobación con los gammas emitidos por una lámina de Indio activada por neutrones térmicos. La cantidad de picos utilizada en el calibrado determinará la calidad de este. En nuestro caso, los picos utilizados para HPGe se muestran en la Tabla 1.

Isótopo	E_γ/keV	$P_\gamma(\%)$
²⁴¹ Am	59.537	36.0
^{116m1} In	138.326	3.29
^{116m1} In	416.86	29.8
²⁰⁷ Bi	569.702	97.74
¹³⁷ Cs	661.66	85.1
^{116m1} In	818.7	11.5
²⁰⁷ Bi	1063.662	74.5
^{116m1} In	1097.3	56.2
⁶⁰ Co	1173.237	99.9
²² Na	1274.53	99.944
^{116m1} In	1293.54	84.84
⁶⁰ Co	1332.501	99.982
⁴⁰ K	1460.830	11
^{116m1} In	1507.4	10
^{116m1} In	2112.1	15.5

Tabla 1. Picos de emisión gamma utilizados para el calibrado del detector de HPGe. Se han utilizado un total de 7 muestras, lo que conlleva el ajuste de 15 valores de la energía. E_γ es la energía del pico y P_γ es la probabilidad de emisión [2].

Con el ajuste de los picos de la tabla 1 se obtiene la siguiente función:

$$Energía(keV) = 2.04890950844 + 0.315719151074 \cdot C + 0.000000923421424485 \cdot C^2 - 2.89150954208 \cdot 10^{-10} \cdot C^3 + 3.60691583004 \cdot 10^{-14} \cdot C^4 - 1.55945612615 \cdot 10^{-18} \cdot C^5$$

Para este detector, $C \leq 8192$ canales.

En este caso solo son relevantes hasta el término cuadrático para canales bajos, sin embargo, para canales de altas energías se hacen necesarios todos los términos.

2.4.2. Calibrado en eficiencias

Cuando se trata de medir la actividad de una muestra con un detector, es necesario haber realizado primeramente un proceso llamado calibración en eficiencias.

El objetivo de este proceso es la obtención de una relación entre la tasa de recuento medida de la muestra y la actividad de dicha muestra. Así, se obtendrá la llamada curva de calibración en eficiencias, que representará la eficiencia absoluta del detector en función de la energía del fotopico. Esta eficiencia absoluta depende de la geometría muestra-detector, del tamaño de la muestra y de la distancia de la muestra al detector.

El proceso de calibración se realiza con fuentes de radiación gamma de actividad conocida en el rango de energías similar al que vamos a encontrar en las medidas que queramos realizar y con una textura física lo más parecida a las muestras reales que vamos a analizar, que son sedimentos. Para ello utilizaremos una muestra calibrada de uranio denominada IAEA-RGU-1 [15] y otra de torio IAEA-RGTh-1 [16] preparadas en la Agencia Internacional de Energía Atómica (IAEA: International Atomic Energy Agency), cuyas características se dan en la Tabla 2. Según las especificaciones de la IAEA, ambas muestras se encuentran en equilibrio secular.

Los espectros obtenidos para ambas muestras calibradas se representan en la Figura 14, donde se comparan las respuestas del detector de HPGe con la del NaI(Tl):

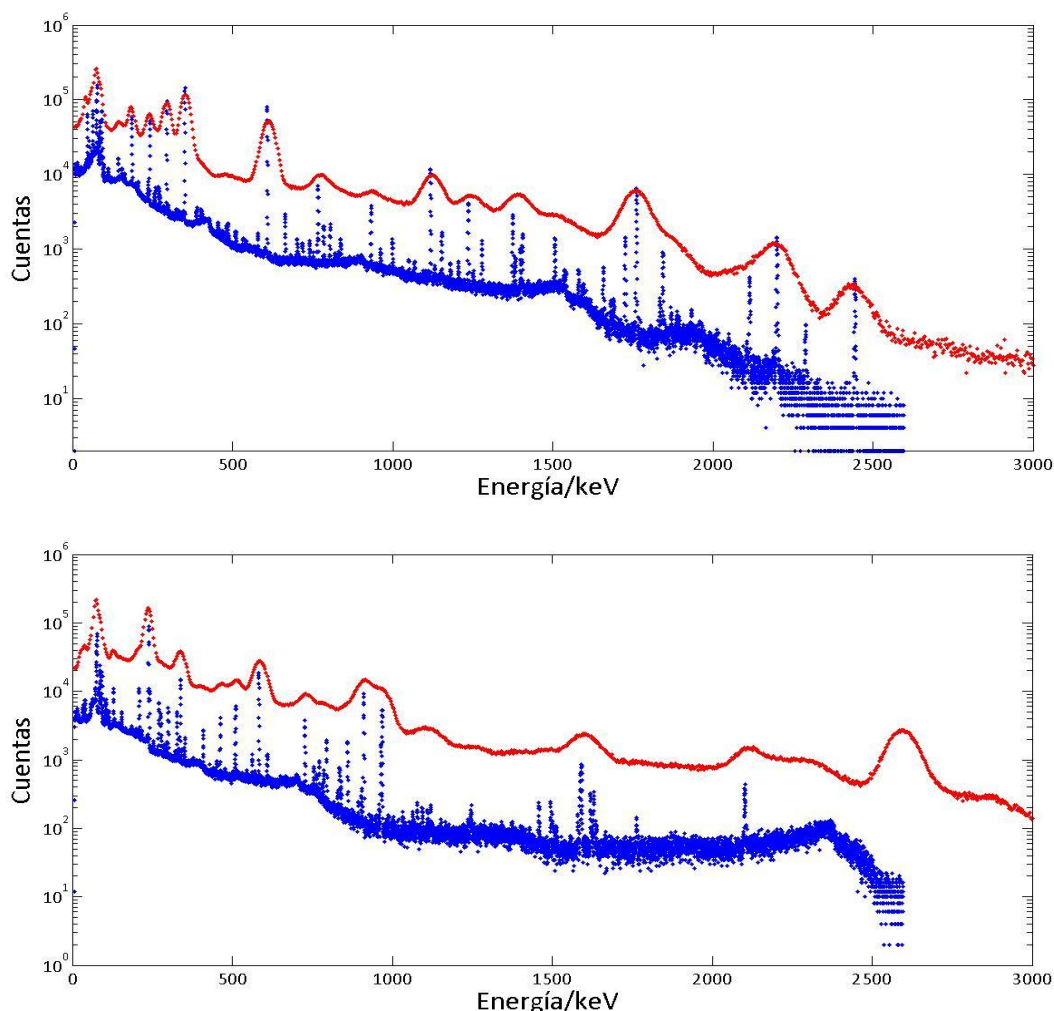


Figura 14. Se representa en la parte superior de la imagen el espectro de la muestra calibrada de uranio denominada IAEA-RGU-1 en el detector NaI(Tl) en rojo y en el semiconductor en azul. En la parte inferior se tiene la misma representación para la muestra calibrada de torio denominada IAEA-RGTh-1.

Posteriormente se procede al cálculo propiamente dicho de la eficiencia de ambos detectores por medio de la siguiente expresión, que relaciona la eficiencia absoluta ε_{abs} de los picos del espectro con las cuentas netas por segundo para cada energía de los picos $C(E_\gamma)$ [17].

$$\varepsilon_{abs}(E_\gamma) = \frac{C(E_\gamma)}{P(E_\gamma) \cdot A(t)} \quad (12)$$

siendo $P(E_\gamma)$ la probabilidad de emisión a energía E_γ , y $A(t)$ la actividad de la muestra por unidad de masa en el momento del calibrado, esta actividad es constante debido a que las muestras se encuentran en equilibrio secular, y es la misma para todos los isótopos pertenecientes a la misma cadena radiactiva. Solamente los isótopos detallados en la Tabla 3 han sido utilizados en nuestro análisis de la eficiencia. Para la muestra IAEA-RGU-1 se han indicado en la Tabla 3 los picos que aparecen mezclados incluso en la respuesta del detector HPGe.

Para obtener la incertidumbre de la eficiencia, aplicamos el cálculo por propagación de errores para proporcionalidad directa e inversa y se tiene:

$$\left(\frac{\Delta \varepsilon_{abs}(E_\gamma)}{\varepsilon_{abs}(E_\gamma)} \right)^2 = \left(\frac{\Delta C(E_\gamma)}{C(E_\gamma)} \right)^2 + \left(\frac{\Delta A(t)}{A(t)} \right)^2 + \left(\frac{\Delta P(E_\gamma)}{P(E_\gamma)} \right)^2 \quad (13)$$

Consideramos que la incertidumbre en la probabilidad es despreciable respecto a las otras dos, así como la del tiempo (las cuentas por segundo se han calculado dividiendo las cuentas netas entre el tiempo de medida).

En las tablas siguientes se muestran los datos sobre las muestras calibradas IAEA-RGU-1 y IAEA-RGTh-1, así como los picos utilizados para el calibrado en eficiencias del detector HPGe.

IAEA-RGU-1		
Isótopo	Actividad	95% C.I.
^{238}U	4940	4910 – 4970
^{235}U	228	226 – 230
^{232}Th	< 4	–

IAEA-RGTh-1		
Isótopo	Actividad	95% C.I.
^{232}Th	3250	3160 – 3340
^{235}U	3.6	3.3 – 3.9
^{238}U	78	72 – 84

Tabla2. Actividades de los diferentes isótopos presentes en las muestras de calibrado IAEA-RGU-1 y IAEA-RGTh-1, acompañadas de sus márgenes de error.

IAEA-RGU-1			
Energía (keV)	Pico correspondiente	Probabilidad de emisión	Cadena
46.539	^{210}Pb	4,25	^{238}U
63.29	^{234}Th	4,8	^{238}U
92.38 + 92.8	^{234}Th	2.77 + 2.81	^{238}U
186.10 + 185.712	$^{226}\text{Ra} + ^{235}\text{U}$	3.50 + 57.5	$^{238}\text{U} + ^{235}\text{U}$
295.213	^{214}Pb	18,5	^{238}U
351.921	^{214}Pb	35,8	^{238}U
609.312	^{214}Bi	44,8	^{238}U
1120.287	^{214}Bi	14,80	^{238}U
1238.1	^{214}Bi	5,79	^{238}U
1764.494	^{214}Bi	15,36	^{238}U
2204.21	^{214}Bi	5,0	^{238}U

IAEA-RGTh-1			
Energía (keV)	Pico correspondiente	Probabilidad de emisión	Cadena
129.065	^{228}Ac	2.45	^{232}Th
238.632	^{212}Pb	43.3	^{232}Th
583.2	^{208}Tl	30.42	^{232}Th
860.6	^{208}Tl	4.47	^{232}Th
911.205	^{228}Ac	26.6	^{232}Th
969.0	^{228}Ac	16.2	^{232}Th

Tabla 3. Picos utilizados para el calibrado en eficiencias del detector HPGe correspondientes a isótopos presentes en las muestras IAEA-RGU-1 y IAEA-RGTh-1.

Para el cálculo de la eficiencia en el NaI(Tl) se utilizarán únicamente aquellos picos que en los espectros de la Figura 14 se pueda observar que no tienen más de una contribución en HPGe a las cuentas de dicho pico. Estos picos son los detallados en la Tabla 4.

IAEA-RGU-1 + IAEA-RGTh-1			
Energía (keV)	Pico correspondiente	Probabilidad de emisión	Cadena
186.10 + 185.712	$^{226}\text{Ra} + ^{235}\text{U}$	3.50 + 57.5	$^{238}\text{U} + ^{235}\text{U}$
609.32	^{214}Bi	44.81	^{238}U
2447.86	^{214}Bi	1.5	^{238}U
727.17	^{212}Bi	6.65	^{232}Th
2204	^{214}Bi	4.86	^{238}U
2602	^{208}Tl	35.712	^{232}Th
295.2	^{214}Pb	18.4963	^{238}U
351.99	^{214}Pb	38.4923	^{238}U

Tabla 4. Picos utilizados para el calibrado en eficiencias del detector de NaI(Tl) correspondientes a isótopos presentes en las muestras IAEA-RGU-1 y IAEA-RGTh-1.

Para todas las tablas anteriores, la probabilidad de emisión de los picos ha sido obtenida de la referencia bibliográfica [2].

Una vez obtenida la eficiencia para diferentes energías, se ha de realizar un ajuste a una función dada, con una serie de parámetros a determinar.

Para el caso del NaI(Tl), bastará con una función sencilla de la forma: [3]

$$\ln \varepsilon = a_1 + a_2 \cdot \ln E + a_3 \cdot (\ln E)^2 + a_4 \cdot (\ln E)^3 \quad (14)$$

Realizando este ajuste, la curva de calibración en eficiencia resulta la indicada en la Figura 15, y los valores de los parámetros de (14):

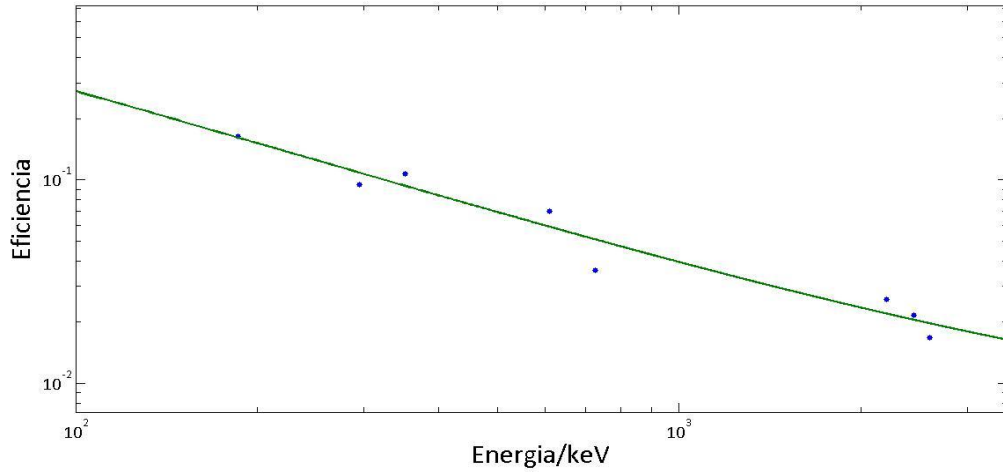


Figura 15. Curva de calibración en eficiencia absoluta (en tanto por uno) obtenida para el detector de NaI(Tl). Los puntos representados se corresponden a picos en el espectro de NaI(Tl) en los cuales se aprecia que se corresponden a un solo pico en el espectro del germanio.

$$a_1 = 0.79551, a_2 = 0.17021, a_3 = -0.18897 \text{ y } a_4 = 0.011565$$

Para el caso del detector de HPGe, aplicamos de nuevo la expresión sencilla (14) para ajustar la eficiencia, pero utilizando todos los picos indicados en la Tabla 3.

La curva de calibración en eficiencia obtenida es presentada en la Figura 16, con los siguientes valores de los coeficientes:

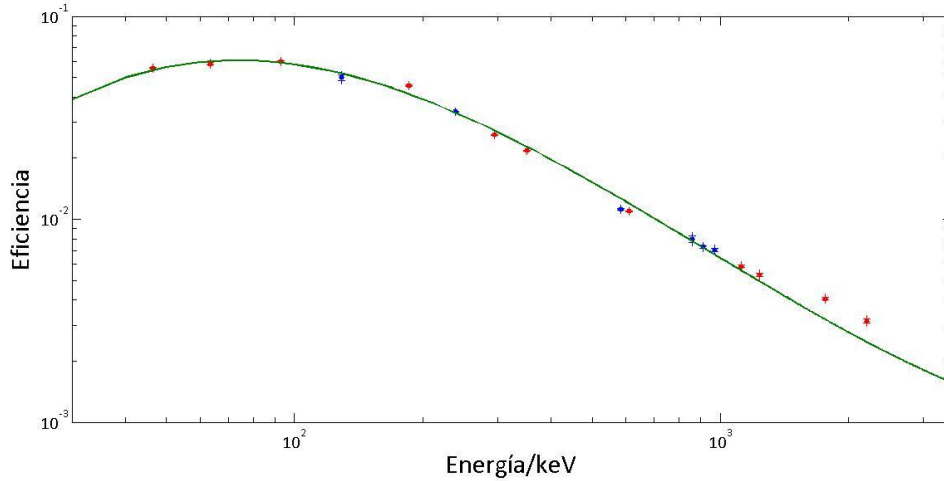


Figura 16. Curva de calibración en eficiencia (en tanto por uno) obtenida para el detector de germanio. Se representan en rojo los puntos que corresponde a la muestra calibrada de uranio (IAEA-RGU-1) y en azul los que corresponden a la muestra de torio (IAEA-RGTh-1). En la gráfica se encuentran representados los errores en el cálculo de la eficiencia, aunque estos apenas se observan debido a la gran precisión en la actividad que presentan las muestras calibradas.

$$a_1 = -17.333, a_2 = 8.0018, a_3 = -1.3621 \text{ y } a_4 = 0.066767$$

2.4.3. Análisis de la Resolución

Utilizaremos para el estudio de la resolución en NaI(Tl) únicamente aquellos picos que en el espectro se puede apreciar que tienen una sola contribución a la anchura del pico.

Para estos picos, a través de la expresión (2) se tiene:

$$R = K \cdot \frac{1}{\sqrt{E}} = \frac{K}{\sqrt{m_0 c^2}} \cdot \sqrt{\frac{m_0 c^2}{E}} \quad (15)$$

donde K es una constante. De la expresión (15) se tiene:

$$\ln R = \ln(K/\sqrt{m_0 c^2}) - \frac{1}{2} \ln(E/m_0 c^2) \quad (16)$$

donde se una la energía asociada a la masa en reposo del electrón $m_0 c^2 = 511 \text{ keV}$.

De esta manera, si se representa gráficamente $\ln R$ frente a $\ln(E/m_0 c^2)$ y se ajusta a una recta, la pendiente de dicha recta deberá tener valor -0.5 . Esta gráfica se representa en la Figura 17:

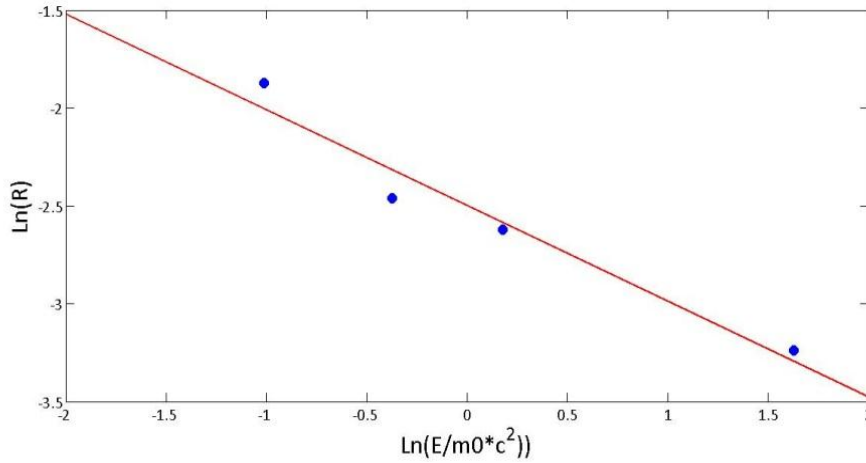


Figura 17. Medidas experimentales de la resolución R para el detector de NaI(Tl) para varios rayos gamma de energía E . El ajuste a una recta proporciona un valor de la pendiente de -0.4884 .

A la vista de la Figura 17, podemos afirmar que los picos utilizados efectivamente provienen de un solo fotón.

Para el estudio de la resolución en HPGe, se ha representado la anchura de los picos en función de la energía en la siguiente gráfica:

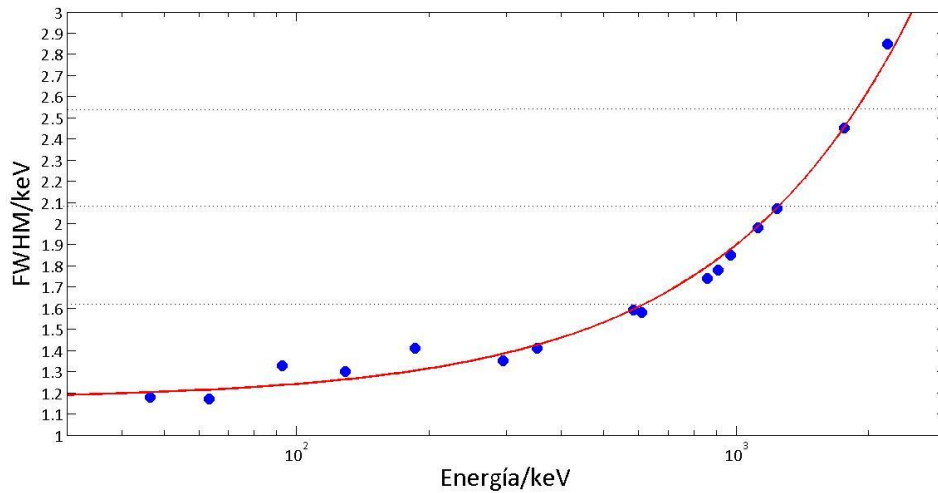


Figura 18. Anchura a mitad de altura FWHM frente a la energía en el detector semiconductor de HPGe.

Para la FWHM de los picos en HPGe se tienen tres contribuciones [3] de la forma:

$$FWHM^2 = W_D^2 + W_X^2 + W_E^2 \quad (17)$$

El primer término, W_D^2 representa las fluctuaciones estadísticas inherentes al número de portadores creados. El término W_X^2 es debido a la recolección de portadores incompleta. El tercer factor, W_E^2 se refiere al aumento de todos los componentes electrónicos que siguen al detector. Todos estos factores contribuyen en mayor o menor medida a la anchura de los picos representada en la Figura 18.

2.4.4. Cálculo de la actividad

Una parte principal de nuestro trabajo consiste en el cálculo de la actividad específica (o actividad por unidad de masa) de diferentes isótopos presentes en las muestras a medir.

La actividad específica será simplemente la actividad (que podemos despejar de la expresión (12)) dividida entre la masa m de la muestra a medir.

$$A_{esp} = \frac{C(E_\gamma)}{m \cdot P(E_\gamma) \cdot \varepsilon(E_\gamma)} \quad (18)$$

Para el cálculo de la incertidumbre asociada a la actividad específica utilizaremos de nuevo la propagación de errores:

$$\left(\frac{\Delta A(t)}{A(t)}\right)^2 = \left(\frac{\Delta C(E_\gamma)}{C(E_\gamma)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta P(E_\gamma)}{P(E_\gamma)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \varepsilon_{abs}(E_\gamma)}{\varepsilon_{abs}(E_\gamma)}\right)^2 \quad (19)$$

Donde de nuevo los errores relativos de la probabilidad resultan despreciables, al igual que los de la eficiencia como se ha comentado en la Figura 16, quedando el error en la actividad determinado por el correspondiente error en las cuentas netas asociadas a la energía correspondiente.

3. Datación de sedimentos por técnicas radiométricas

3.1. Datación usando el método de ^{210}Pb en exceso

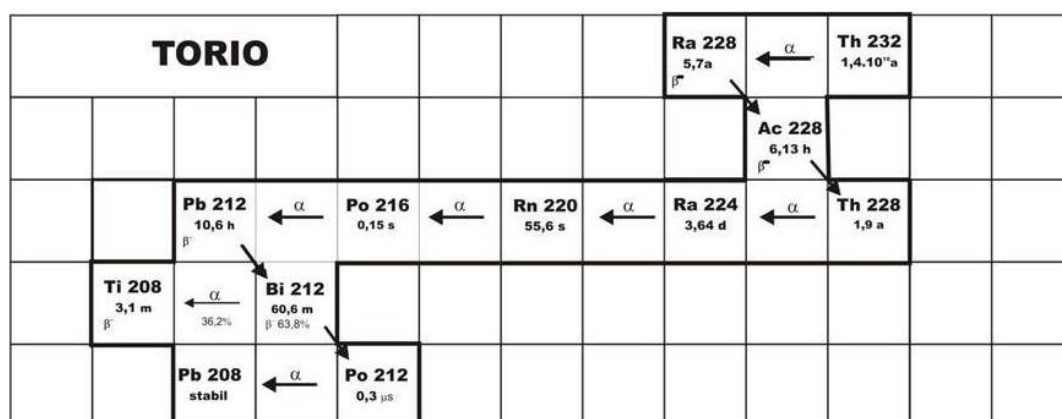
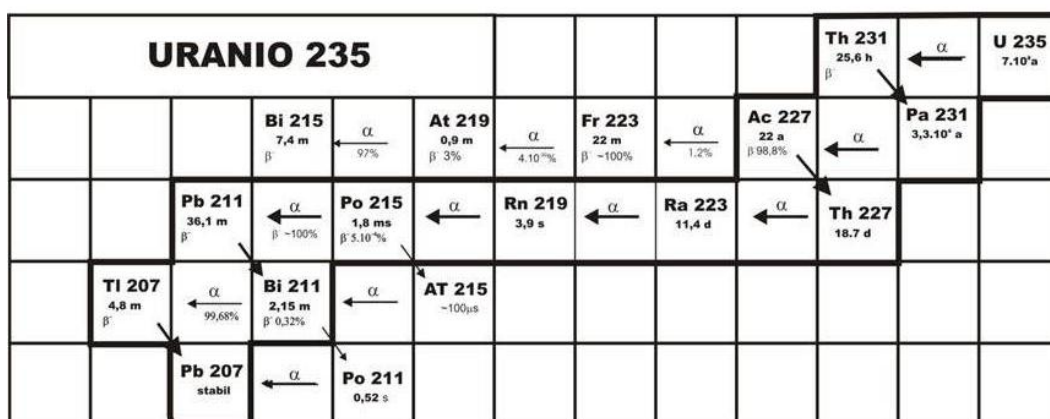
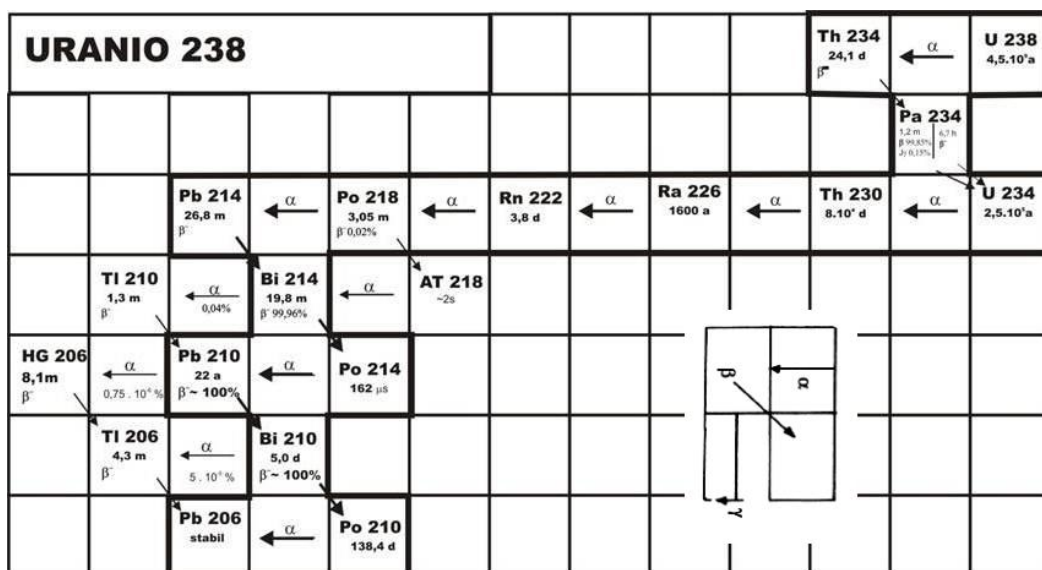
El Uranio está presente en la mayoría de los materiales sedimentarios de la corteza terrestre. Su isótopo natural más abundante, el ^{238}U , es el padre de una cadena radiactiva compuesta por nucleidos de vidas medias muy variadas, pero todas ellas muchos más pequeñas que la del padre de la cadena ($T_{1/2}(^{238}\text{U}) = 4.5 \cdot 10^9$ años). Esta cadena radiactiva se encuentra representada en la Figura 19, así como las cadenas radiactivas del ^{235}U y del ^{232}Th . En ella podemos observar que el ^{210}Pb es uno de los isótopos con vida media más larga de la cadena del ^{238}U ($T_{1/2}(^{210}\text{Pb}) = 22$ años), pero lo suficientemente corta como para que sea posible observar variación en su concentración con el tiempo en escalas de entre 5 y 200 años. [18]

Debido a este motivo y a la particularidad que presenta el ciclo del ^{210}Pb en la naturaleza, se hace posible su utilización como trazador para datar eventos sucedidos dentro de este rango de antigüedad. [21]

3.1.1. Ciclo del ^{210}Pb . Pb soportado y en exceso.

Como se observa en la cadena radiactiva del ^{238}U detallada en la Figura 19, el descendiente inmediato del ^{226}Ra es el ^{222}Rn . El radón es un gas noble, por este motivo no queda ligado a la partícula de suelo, sino que gran parte de él emana a la atmósfera antes de decaer con $T_{1/2}(^{222}\text{Rn}) = 3.8$ días, y pasa a formar parte del aire. El resto de él queda atrapado en el suelo, continuando en equilibrio secular con su predecesor, el ^{226}Ra , y con el resto de la cadena.

Por el contrario, el ^{222}Rn emanado pierde el equilibrio secular y decae con su propio periodo de semidesintegración, 3.8 días, a través de isótopos de vida media corta, formando finalmente el ^{210}Pb . Al precipitar este ^{210}Pb de nuevo hacia la superficie, continuará decayendo con su propio periodo de semidesintegración aislado del resto de la cadena radiactiva. Esto es lo que se conoce como ^{210}Pb no soportado o en exceso ($^{210}\text{Pb}_{ex}$).



Z

N

Figura 19. Cadena natural de decaimiento del ^{238}U , ^{235}U y ^{232}Th [19].

Simultáneamente, existirá otra contribución al ^{210}Pb en el suelo cuyo origen sea el decaimiento del ^{222}Rn que quedó atrapado en él. Este ^{210}Pb sí estará en equilibrio secular con los demás descendientes de la cadena (^{226}Ra , ^{214}Bi , ^{214}Pb , ...). A esta fracción de ^{210}Pb se la conoce como ^{210}Pb soportado ($^{210}\text{Pb}_{\text{sop}}$).

Este ciclo se encuentra representado en la Figura 20, donde además se representa la presencia del ^{137}Cs en los sedimentos, proveniente de ensayos nucleares atmosféricos.

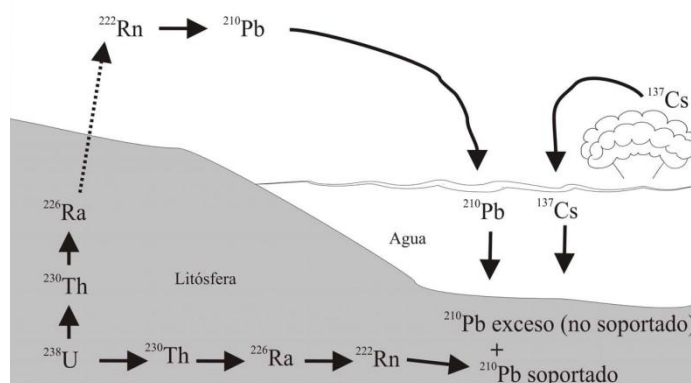


Figura 20. Esquema del decaimiento radiactivo del ^{238}U [20].

A partir de la concentración de $^{210}\text{Pb}_{\text{exc}}$ a diferentes profundidades de un sedimento es posible conocer la tasa de sedimentación, así como datar las diferentes capas del mismo, al ir decreciendo su actividad con la profundidad por decaimiento radiactivo. Para obtener este valor, es preciso conocer la fracción de la actividad del ^{210}Pb de las muestras que corresponde al $^{210}\text{Pb}_{\text{sop}}$ y al $^{210}\text{Pb}_{\text{exc}}$.

La solución a este problema consiste en estudiar la actividad de los descendientes del ^{238}U que se encuentran en equilibrio secular con el $^{210}\text{Pb}_{\text{sop}}$, y restarle esta contribución a la actividad total de ^{210}Pb , obteniendo así solo la fracción correspondiente al $^{210}\text{Pb}_{\text{exc}}$ buscado.

3.2. Modelos matemáticos aplicados a la datación de sedimentos

Una vez obtenida la cantidad de $^{210}\text{Pb}_{\text{exc}}$ presente en el sedimento a diferentes profundidades, se hace necesaria la aplicación de distintos modelos que permitan la obtención de información acerca de la tasa de acumulación sedimentaria.

Existen dos modelos sencillos que se utilizan para el estudio de perfiles de concentración de ^{210}Pb . Ambos modelos presuponen las siguientes hipótesis iniciales: [20]

- Existe un flujo constante de ^{210}Pb atmosférico hacia el sistema.
- El ^{210}Pb atmosférico no presenta movilidad post-deposicional dentro del sedimento.
- Los sedimentos son considerados como un sistema cerrado, es decir, no existe pérdida desde el sedimento hacia el agua.
- La concentración de ^{210}Pb disuelto en el agua es prácticamente cero.
- El ^{210}Pb tiene un tiempo de residencia atmosférico relativamente corto en relación al tiempo de residencia en un sistema acuático, de tal forma que el ^{210}Pb atmosférico que alcanza la columna de agua es transferido rápidamente al sedimento.

Para entender estos modelos es necesario definir una serie de parámetros esquematizados en la Figura 21.

La tasa de acumulación sedimentaria (s) de una capa i se define como el espesor de dicha capa (Δx_i) respecto al tiempo transcurrido en su formación (Δt_i):

$$s_i = \frac{\Delta x_i}{\Delta t_i} \quad (20)$$

Esta magnitud se expresará por conveniencia en las unidades [$cm \cdot a^{-1}$].

La tasa de acumulación másica (r) de la capa i representa la variación de la masa seca (Δm_i) por sección (S) y por el tiempo transcurrido en su formación (Δt_i):

$$r_i = \frac{\Delta m_i}{S \cdot \Delta t_i} \quad (21)$$

La magnitud se expresará en [$gr \cdot cm^{-2} \cdot a^{-1}$].

Definimos f_i como el flujo medio durante la formación de la capa i en [$Bq \cdot cm^{-2} \cdot a^{-1}$].

$$f_i = r_i \cdot A_i(t = 0) \quad (22)$$

Donde $A_i(t = 0)$ es la actividad inicial (en $t = 0$) por unidad de masa del ^{210}Pb en la capa i en unidades [$Bq \cdot g^{-1}$] (actividad específica).

3.2.1. Modelo de Concentración inicial constante (CIC. Constant Initial Concentration)

El modelo CIC supone que la concentración por unidad de masa inicial (al formarse el estrato) de depósito del $^{210}Pb_{exc}$ es constante en el tiempo, es decir, la misma en todas las capas, e igual a la que se puede medir en la capa superficial A_0 .

$$A_i(t = 0) = cte = A_0 \quad (23)$$

Por lo que teniendo en cuenta la expresión (11) se tiene:

$$\frac{f_i}{r_i} = cte \quad (24)$$

La concentración de un cierto estrato en el presente se calcula teniendo en cuenta la ley de desintegración radiactiva: [1]

$$A_i(t) = A_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (25)$$

Despejando el valor de t se tiene:

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{A_0}{A_i} \quad (26)$$

Si ahora consideramos una tasa de acumulación sedimentaria $s_i = s = cte$, se tiene para este valor:

$$s = \frac{dx}{dt} \rightarrow cte \rightarrow x = s \cdot t \quad (27)$$

donde x es la profundidad alcanzada por la capa al cabo de un tiempo t de su formación en la superficie del sedimento.

Así, s queda definida como:

$$s = \frac{x}{t} \quad (28)$$

siendo $t = N \cdot \Delta t_i$ y $x = N \cdot \Delta x_i$, para N = número de capas.

De esta manera, el valor de la tasa de acumulación sedimentaria se obtendría sin más que representar gráficamente la línea recta:

$$\ln A_i = \ln A_0 - \frac{\lambda \cdot x}{s} \quad (29)$$

Cuya pendiente η será:

$$\eta = -\frac{\lambda}{s} \quad (30)$$

Este modelo únicamente contempla la posibilidad de que los perfiles de concentración de ^{210}Pb sean monótonamente decrecientes con la profundidad. La hipótesis de partida de considerar que la concentración inicial es siempre constante restringe la validez del modelo a zonas con poca actividad humana y condiciones meteorológicas anualmente constantes.

3.2.2. Modelo de Velocidad de aporte constante (CRS. Constant Rate Supply)

El modelo CRS propone una hipótesis de partida mucho más plausible. La hipótesis consiste en que el flujo es constante en el tiempo a lo largo del proceso de sedimentación. Es decir, la cantidad de $^{210}\text{Pb}_{exc}$ anual y por unidad de superficie es constante.

De esta manera se tiene:

$$f = A_i(t = 0) \cdot r_i = cte \quad (31)$$

La diferencia de esta hipótesis con la del anterior modelo radica en que, en este caso, se contempla la posibilidad de que un aumento en los sedimentos depositados debido a condiciones meteorológicas extremas, no produzca un aumento de igual calibre del $^{210}\text{Pb}_{exc}$.

Se define $A^*(i)$ como la actividad acumulada por unidad de área para una determinada capa i en $[\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}]$. Dada la hipótesis inicial de flujo constante, la actividad $A^*(i)$ de las muestras en el momento en el que estaban en la superficie será igual para todas las muestras:

$$A^*(i, t = 0) = A^*(0) = cte \quad (32)$$

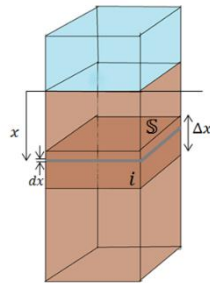


Figura 21. Explicación de la nomenclatura utilizada. Se representa la capa i —ésima, de espesor Δx_i , formada en un tiempo Δt_i , con actividad A_i . Dentro de la capa, a profundidad x , se tiene un dx con actividad $A(x)$.

La actividad acumulada por unidad de área desde x hasta ∞ se obtendrá de la actividad específica de la siguiente manera:

$$A^*(x) = \int_x^\infty \frac{A(x')}{s} \cdot dm \quad (33)$$

Siendo dm el diferencial de masa, que se relaciona con la densidad y el dx de la siguiente manera: $dm = \rho(x) \cdot S \cdot dx$. Así, se tiene:

$$A^*(x) = \int_x^\infty \frac{A(x')}{s} \cdot \rho(x') \cdot S \cdot dx' = \int_x^\infty A(x') \cdot \rho(x') \cdot dx' \approx \sum_{j=x}^\infty A_j \cdot \rho_j \cdot \Delta x_j \quad (34)$$

Expresión para la cual se ha supuesto una densidad del sedimento que varía con la profundidad. El subíndice j denota cada una de las secciones en las que se ha dividido el

testigo, lo que nos permite realizar una aproximación del cálculo para hacerlo realizable experimentalmente.

Podemos reescribir la expresión anterior de la forma siguiente, aplicando la condición inicial del modelo $f = cte$ (ecuación (31):

$$A(x) = A_i(t) = A_i(t = 0)e^{-\lambda t} = \frac{f}{r_i} e^{-\lambda t} = \frac{f}{r(x)} e^{-\lambda t} \quad (35)$$

donde t se entiende como el tiempo en el que el sedimento inicial alcanza la profundidad x .

Introduciendo la expresión anterior en la integral (34) tenemos:

$$A^*(x) = \int_x^\infty A(x') \cdot \rho(x') \cdot dx' = \int_x^\infty \frac{f}{r(x')} \frac{e^{-\lambda t'}}{s} \cdot \rho(x') \cdot S \cdot dx' = \int_x^\infty \frac{f}{r(x')} e^{-\lambda t'} \cdot \rho(x') \cdot dx' \quad (36)$$

Por medio de la expresión (21), se tiene la relación entre dx y dt :

$$r(x) = \frac{1}{s} \frac{dm}{dt} = \frac{1}{s} \frac{s \cdot \rho(x) dx}{dt} \rightarrow \rho(x) \cdot \frac{dx}{r(x)} = dt \quad (37)$$

Que al introducirla en la expresión (36) se tiene:

$$A^*(x) = \int_t^\infty f \cdot e^{-\lambda t'} \cdot dt' = \frac{f}{\lambda} e^{-\lambda t} = A^*(0) \cdot e^{-\lambda t} \quad (38)$$

donde $A^*(0) = \frac{f}{\lambda}$.

Lo que quiere decir que la capa i sufrirá pérdidas de actividad por desintegración radiactiva de la forma:

$$A^*(x) = A^*(0) \cdot e^{-\lambda t} \quad (39)$$

De esta manera, despejando el tiempo, se tiene que la edad de la capa a profundidad x será:

$$t(x) = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{A^*(0)}{A^*(x)} \quad (40)$$

Por lo tanto, se tendrá una expresión para la tasa de acumulación sedimentaria $s(x)$ de la forma:

$$s(x) = \frac{dx}{dt} = \frac{1}{\rho(x)} r(x) = \frac{\lambda A^*(x)}{\rho(x) A(x)} = \frac{f e^{-\lambda t}}{\rho(x) A(x)} \quad (41)$$

De esta manera, el modelo nos permite tanto datar cada una de las capas como obtener un valor de $s(x)$ para cada capa. Tendremos por tanto la evolución temporal de la tasa de acumulación sedimentaria.

Este modelo incluye además la posibilidad de suponer, como en el caso anterior, una tasa de acumulación sedimentaria constante. En cuyo caso, la expresión (41) nos conducirá a los mismos resultados que los predichos en el modelo CIC.

3.2.3. Otros modelos:

En los modelos anteriores se ha considerado que una vez depositado el $^{210}Pb_{exc}$ comienza a disminuir su actividad y esta disminución es debida únicamente al decaimiento radiactivo. Pero esta no es toda la evolución que presenta el sedimento, existen otros factores que no se han tenido en cuenta como es la presión que se ejerce sobre el sedimento, su cambio en la densidad, la biodifusión, la porosidad,... Todos estos efectos modificarán la concentración de $^{210}Pb_{exc}$ en los sedimentos. [21]

Para el estudio de estos efectos, vamos a considerar una capa a una cierta profundidad x , de espesor Δx , como se esquematiza en la Figura 21, y vamos a definir la actividad de $^{210}Pb_{exc}$ por unidad de volumen en dicha capa de la siguiente manera:

$$B(x) = \rho(x) A(x) \quad (42)$$

La variación de esta actividad con respecto al tiempo tendrá tres contribuciones:

$$\frac{\partial B(x,t)}{\partial t} = \left(\frac{\partial B(x,t)}{\partial t}\right)_d + \left(\frac{\partial B(x,t)}{\partial t}\right)_t + \left(\frac{\partial B(x,t)}{\partial t}\right)_b \quad (43)$$

La primera contribución proviene del decaimiento radiactivo, el cual, al igual que en el resto de modelos, se expresa:

$$\left(\frac{\partial B(x,t)}{\partial t}\right)_d = -\lambda \cdot B(x, t) \quad (44)$$

Puesto que la capa considerada se encuentra posicionada encima de otra capa de sedimentos y debajo de otra, existirá un movimiento de entrada y de salida de sedimentos desde las capas circundantes mientras el sedimento no se encuentre totalmente consolidado. Esta variación es lo que representa el segundo término.

Vamos a llamar a la velocidad que presenta este movimiento w , velocidad de deposición, debida a la transferencia o transporte entre capas, de manera que la velocidad de entrada del sedimento en la capa será $w(x)$ y a la de salida $w(x + \Delta x)$. En un tiempo Δt , habrá una capa superior de espesor $w \cdot \Delta t$ que entrará dentro de nuestra capa a profundidad x y de la misma manera habrá otra capa que salga. La variación producida por estos dos procesos en la actividad $B(x, t)$ será la diferencia entre la actividad por unidad de volumen que entra en ese Δt y la que sale, lo que constituye el segundo término, llamado término de transporte:

$$\left(\frac{\partial B(x,t)}{\partial t}\right)_t = \frac{1}{\Delta t} \left[\frac{B(x)[\rho(x) \cdot S \cdot w(x) \cdot \Delta t]}{\rho(x) \cdot S \cdot \Delta x} - \frac{B(x+\Delta x)[\rho(x+\Delta x) \cdot S \cdot w(x+\Delta x) \cdot \Delta t]}{\rho(x+\Delta x) \cdot S \cdot \Delta x} \right] \quad (45)$$

La expresión anterior puede reescribirse como:

$$\left(\frac{\partial B(x,t)}{\partial t}\right)_t = -\frac{\partial}{\partial x} [B(x) \cdot w(x)] \quad (46)$$

El tercer término es debido a la contribución biológica (biodifusión). Este término tiene en cuenta el hecho de que la macrofauna pueda mezclar los trazadores sólidos en los sedimentos, haciendo decrecer los gradientes existentes. Puesto que dentro de la capa existe un gradiente en la actividad del $^{210}\text{Pb}_{exc}$, esto provocará un flujo difusivo F [$\text{Bq}/\text{cm}^2 \cdot \text{año}$] de la concentración de $^{210}\text{Pb}_{exc}$ en dirección contraria al gradiente (Ley de Fick) [22]:

$$F = -D \frac{\partial B(x,t)}{\partial x} \quad (47)$$

donde D es el coeficiente de biodifusión en $\text{cm}^2/\text{año}$.

El tercer término tendrá por tanto la forma:

$$\left(\frac{\partial B(x,t)}{\partial t}\right)_b = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial B(x,t)}{\partial x} \right) \quad (48)$$

De esta manera, se tendrá una variación total en la actividad por unidad de volumen $B(x, t)$ del $^{210}\text{Pb}_{exc}$:

$$\left(\frac{\partial B(x,t)}{\partial t}\right) = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial B(x,t)}{\partial x} \right) - B(x) \cdot w(x) - \lambda \cdot B(x, t) \quad (49)$$

Si suponemos que no hay difusión ($D = 0$) y la velocidad de deposición w es constante $w = w_0$, las soluciones que se obtienen para la ecuación (49) son de la forma:

$$B(x, t) = B_0 e^{-\lambda t} + B_1 e^{-\lambda x/w_0} \quad (50)$$

donde B_0 y B_1 son constantes de integración. La solución coincide con la obtenida previamente (25) si se tiene en cuenta que para tasa de acumulación sedimentaria constante $x = w_0 \cdot t$.

3.3. Datación por ^{137}Cs

La presencia del ^{137}Cs en la atmósfera comienza a ser notoria en 1952 como consecuencia de los ensayos con armas nucleares, alcanzando un máximo en los años 1963-1964, como puede verse en el ejemplo de la Figura 22. A partir de ese momento, la concentración de ^{137}Cs en la

atmósfera va disminuyendo a medida que se precipita y se va acumulando en las capas de los sedimentos. [23]. De esta manera, es posible obtener un valor de la tasa media de sedimentación en los últimos años sin más que conocer la profundidad a la que se registra su máxima concentración.

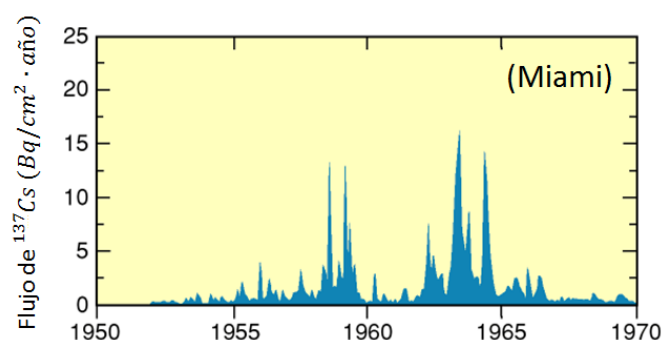


Figura 22. Se muestra como ejemplo el flujo de ^{137}Cs depositado en la superficie terrestre en el en Miami en función del tiempo. Se puede observar que la deposición comienza en 1952 y alcanza un punto máximo durante 1963 y 1964 [24].

En condiciones ideales, el perfil que se obtendría para el ^{137}Cs debería presentar una forma similar a la de la Figura 22.

4. Aplicación al estuario de San Pedro del Mar (playa de la Maruca)

4.1. Extracción y preparación de las muestras

Se han extraído dos testigos sedimentarios en el estuario de San Pedro del Mar (4/12/2013), separados entre ellos una distancia aproximada de 10 metros. Los testigos son de diferente longitud y diferentes diámetros, como puede verse en la Figura 22. Llamaremos *testigo a* al testigo que presenta una longitud de 30 cm y un diámetro de 8 cm. Para este testigo, los sedimentos se seccionaron en 10 capas de 3 cm de espesor. Llamaremos *testigo b* al testigo cuya longitud es de 50 cm y su diámetro de 6 cm. En este caso los sedimentos se seccionaron en capas de 5 cm de espesor.

Los sedimentos de cada capa en ambos testigos fueron secados, molidos y tamizados. Una vez hecho esto, se tomaron 50 g de peso seco de cada capa y se introdujeron en frascos cilíndricos de plástico de la misma geometría (60 mm de diámetro interior) (16/12/2013). Las muestras fueron numeradas del 1 al 10, siendo para ambos testigos la muestra 1 la más profunda y la 10 la más superficial.

Una vez preparadas las muestras y después de un tiempo de espera de 2 meses necesarios para restablecer el equilibrio radiactivo, se procedió a su análisis por espectrometría gamma. Cabe destacar que para las medidas del fondo se ha utilizado un frasco vacío idéntico al de las muestras con el fin de simular al máximo posible las mismas condiciones.



Figura 23. Se muestra el tamaño de las muestras y de los dos testigos utilizados.

4.2. Espectrometría gamma

En esta sección vamos a exponer los resultados obtenidos por medio de la espectrometría gamma tanto para el detector de HPGe como para el centelleador de NaI(Tl) de las muestras recogidas.

4.1.1. Comparación entre los dos detectores

Para realizar una primera comparación entre ambos detectores se ha tomado la muestra número 9 (la segunda más superficial) del testigo b.

Se van a mostrar a continuación los espectros de rayos gamma para los dos detectores:

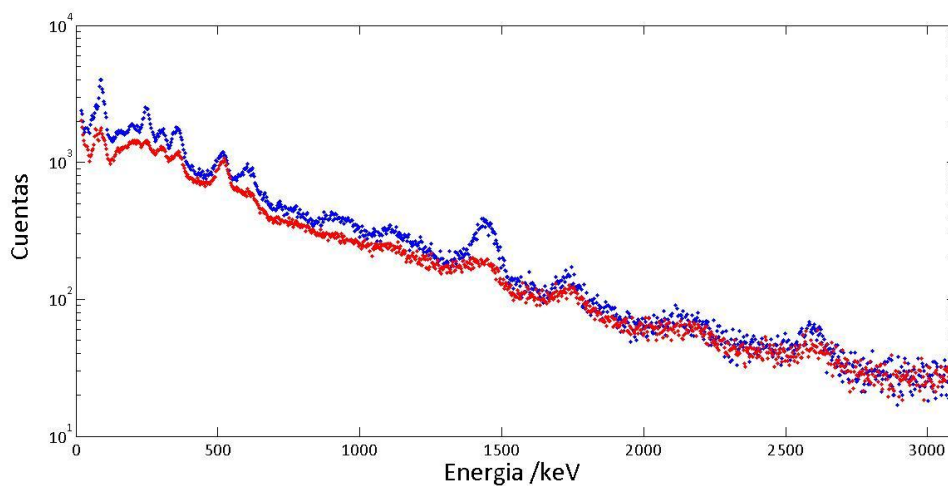


Figura 24. Ejemplo de espectro de emisión gamma en NaI(Tl) obtenido para la muestra 9 del testigo b (correspondiente al nivel de 5 a 10 cm de profundidad). Se representa en azul las cuentas de la muestra y en rojo las cuentas del fondo.

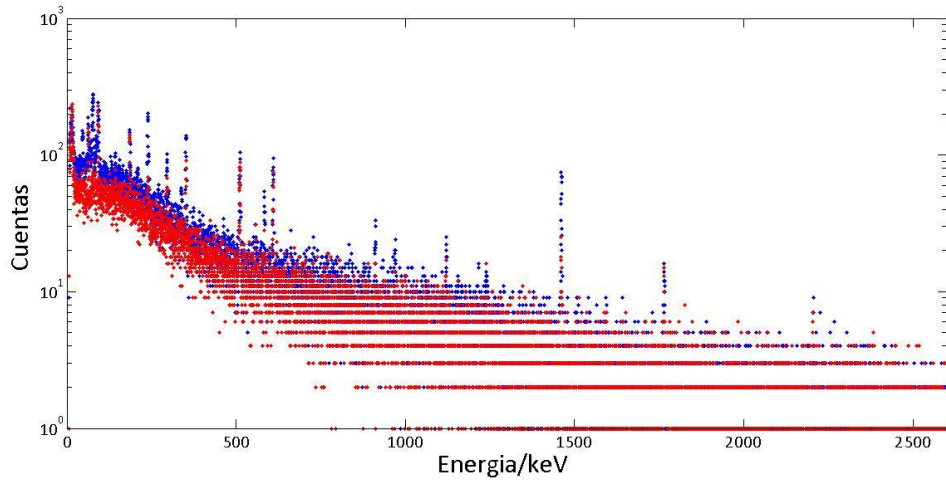


Figura 25. Ejemplo de espectro de emisión gamma en HPGe obtenido para la muestra 9 del testigo b (correspondiente al nivel de 5 a 10 cm de profundidad). Se representa en azul las cuentas de la muestra y en rojo las cuentas del fondo.

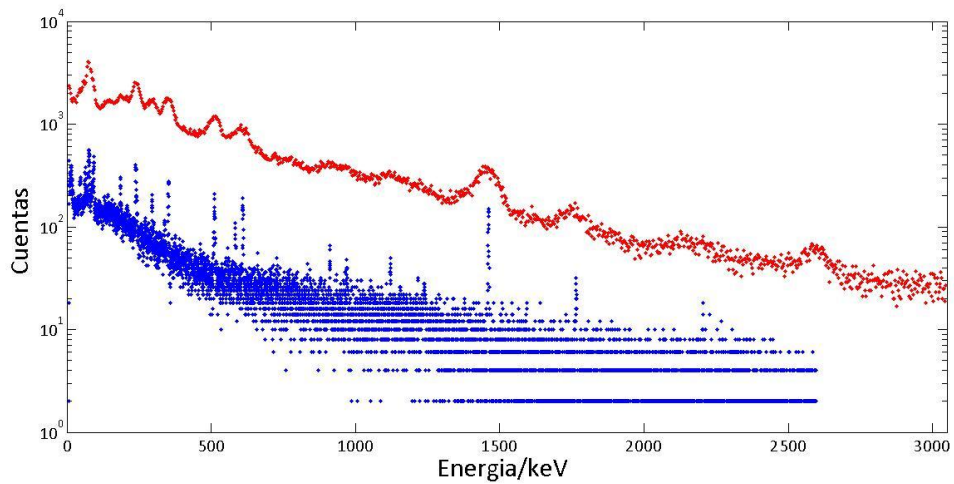
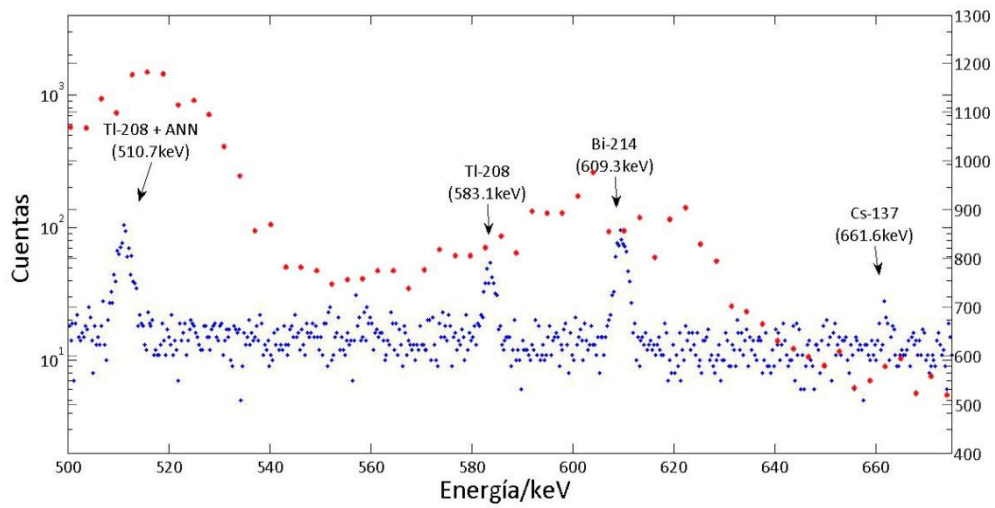
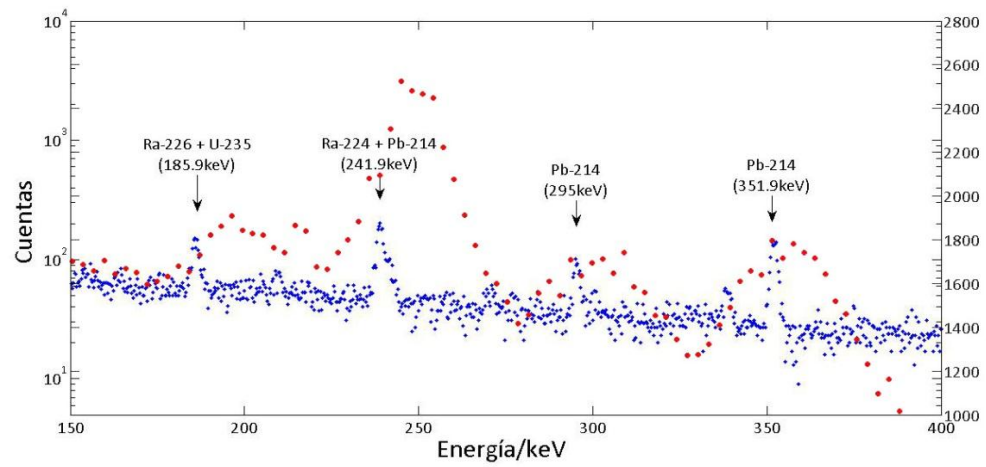
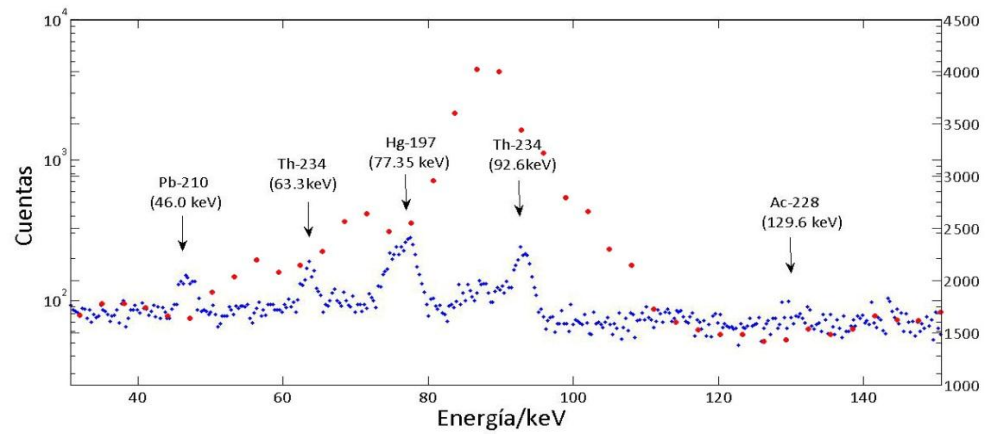


Figura 26. Comparación entre los espectros de HPGe (azul) y NaI(Tl) (rojo), ambos para la muestra 9 del testigo b.

Para observar con más detalle los picos de la Figura 26, vamos a mostrar la figura ampliada en las regiones de energía más importantes en nuestro trabajo, etiquetando los picos de interés:



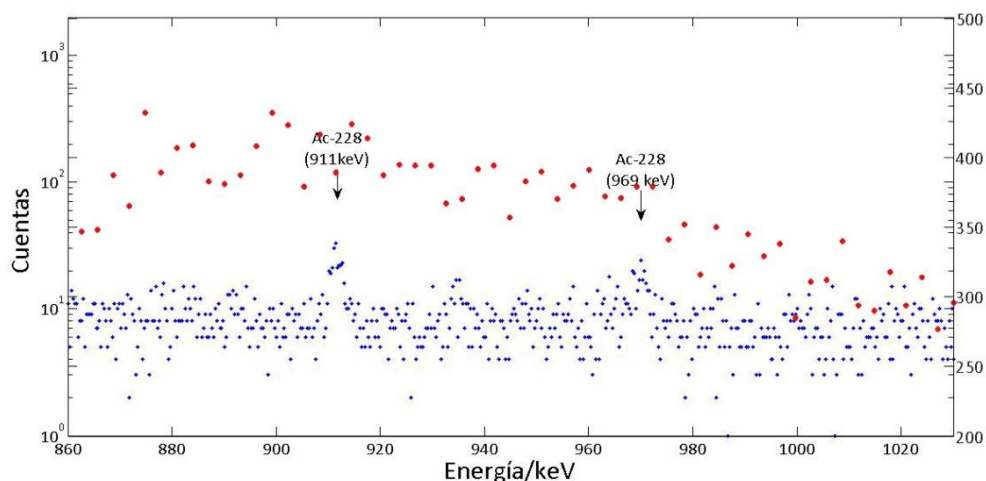
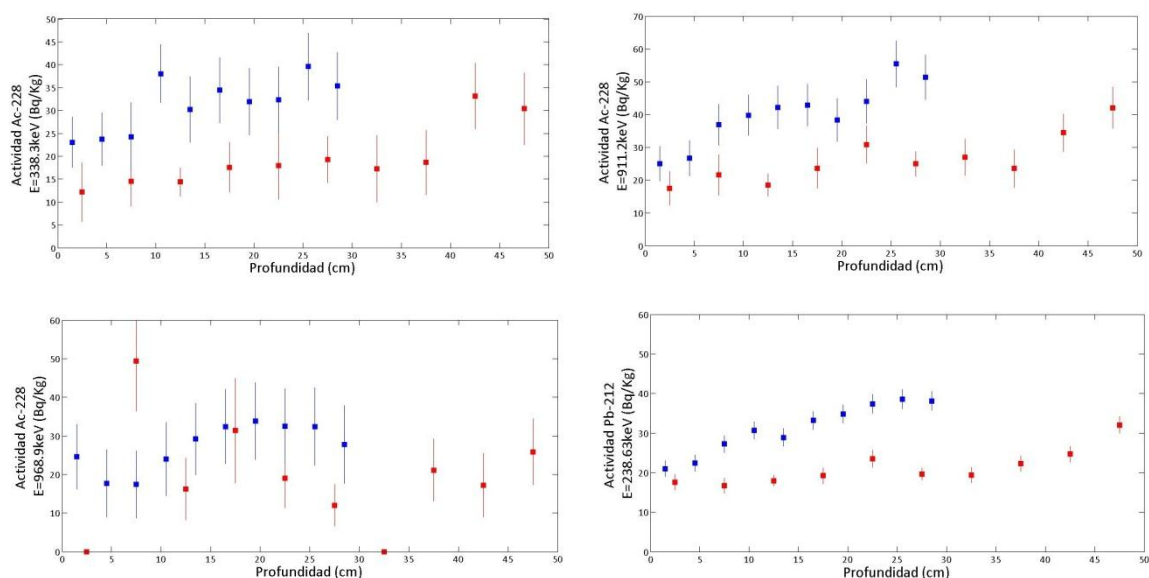


Figura 27. Regiones de la Figura 26 ampliadas. Se representa para las 4 gráficas las cuentas para el HPGe en escala logarítmica (azul) y el eje Y a la izquierda. Las cuentas del NaI(Tl) se representan en escala lineal (rojo) y su eje Y a la derecha.

4.3. Obtención de los perfiles de actividad

Una vez calculada la eficiencia del detector de HPGe y del NaI(Tl), se ha procedido al cálculo de la actividad específica y a la posterior representación gráfica de los perfiles de actividad para diferentes picos del espectro.

En primer lugar, se tienen los perfiles de los isótopos de la cadena del ^{232}Th haciéndose evidente la presencia de torio en nuestras muestras:



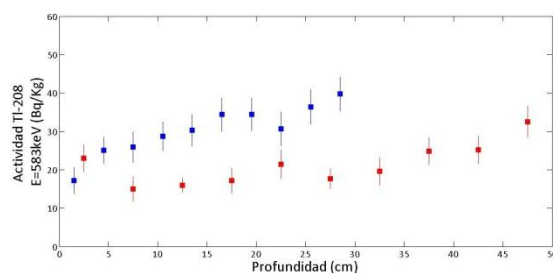


Figura 28. Perfiles de actividad específica de los isótopos de la cadena del ^{232}Th para HPGe. Se representa el testigo a (azul) y el testigo b (rojo).

Se representan ahora en la figura 29 los perfiles de los isótopos pertenecientes a la cadena del ^{238}U , así como el perfil del ^{137}Cs :

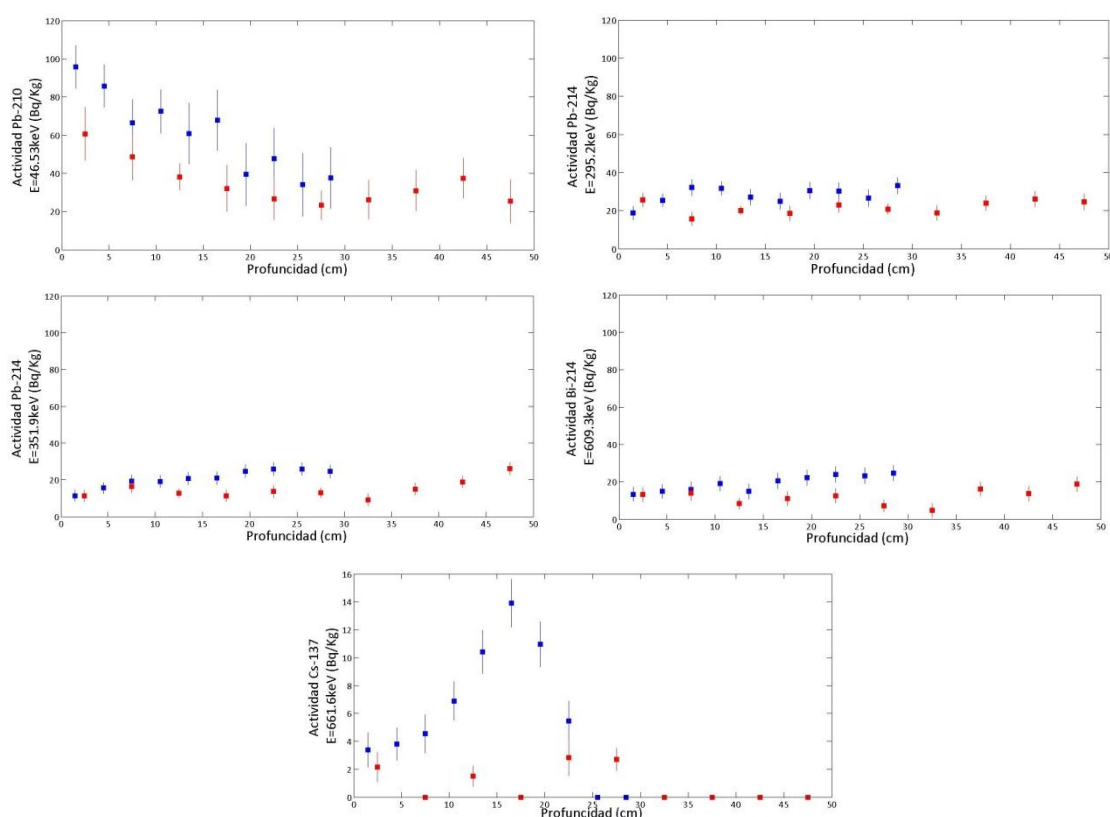


Figura 29. Perfiles de actividad específica para el testigo a (azul) y para el testigo b (rojo) en HPGe, para isótopos de la cadena del ^{238}U y para el ^{137}Cs .

El pico de energía 46.53 keV corresponde a la actividad específica total de ^{210}Pb . Para el ^{214}Pb se utilizaron dos picos diferentes de energías 295.2 keV y 351.9 keV . Se utilizó el pico de 609.3 keV para el ^{214}Bi . Por último, el pico de 661.6 keV para el ^{137}Cs , que es un radionúclido artificial.

La cantidad de $^{210}\text{Pb}_{exc}$ se calculará restando de la actividad total de ^{210}Pb la actividad del $^{210}\text{Pb}_{sop}$. Esta última coincide, como ya se ha explicado anteriormente, con las actividades que presentan el ^{214}Pb y el ^{214}Bi . De manera que, haciendo un promedio de las actividades de

estos dos últimos isótopos para cada profundidad, es posible obtener la actividad de $^{210}\text{Pb}_{\text{sop}}$ en función de la profundidad, y restársela a las actividades del perfil del ^{210}Pb total. Así, se obtiene el perfil de actividad específica del $^{210}\text{Pb}_{\text{exc}}$ que se muestra en la Figura 30:

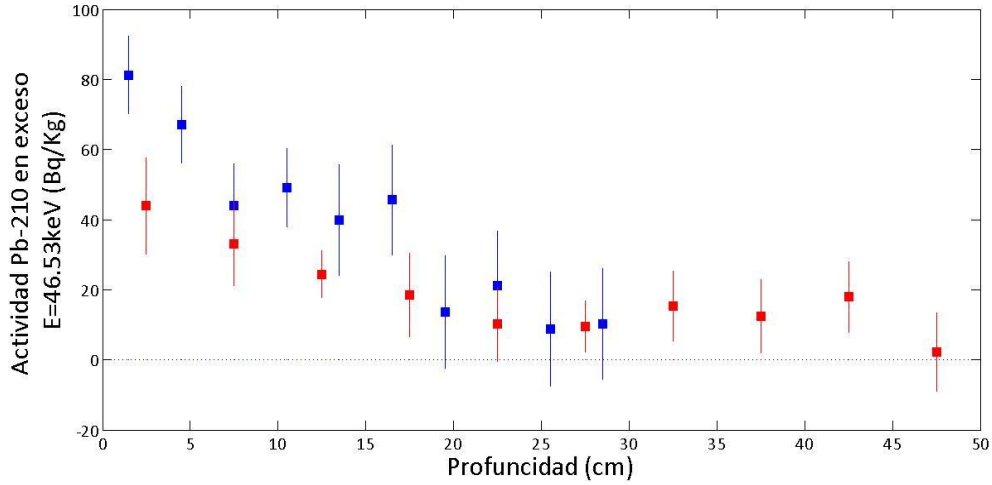


Figura 30. Perfil de actividad específica del $^{210}\text{Pb}_{\text{exc}}$. Se representa en azul el testigo a y en rojo el testigo b.

Con el detector de NaI(Tl) se ha seguido el mismo procedimiento para los picos más claros que nos proporcionaba dicho detector, obteniéndose los siguientes perfiles:

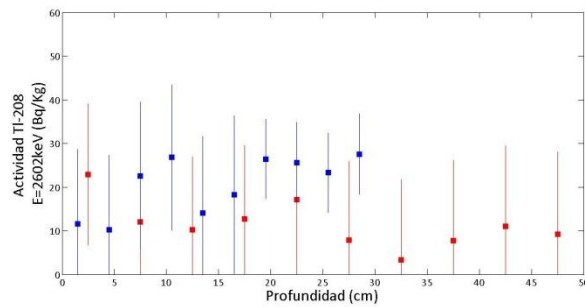


Figura 31. Perfil de actividad específica para el isótopo ^{208}Tl de la cadena del ^{232}Th en NaI(Tl). El testigo a (azul) y para el testigo b (rojo) en NaI(Tl).

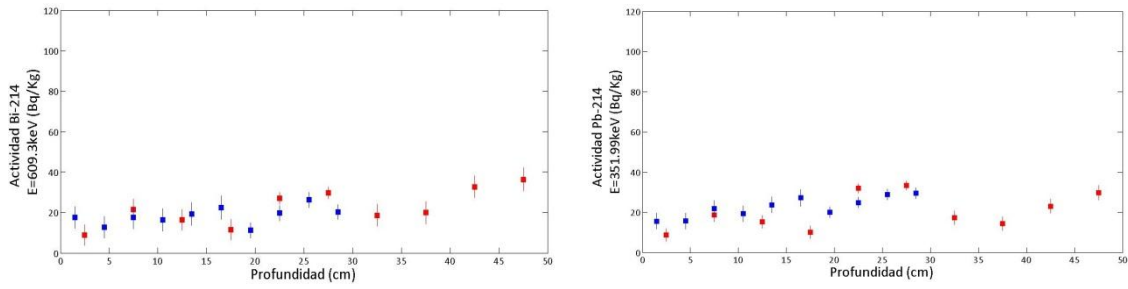


Figura 32. Perfil de actividad específica para el isótopo ^{214}Bi y ^{214}Pb de la cadena del ^{238}U en $\text{NaI}(\text{TI})$. El testigo a (azul) y para el testigo b (rojo) en $\text{NaI}(\text{TI})$.

4.4. Discusión sobre los resultados

A la vista de los perfiles de la Figura 29 para el HPGe, se observa como el ^{210}Pb total presenta un comportamiento decreciente, como era de esperar debido a la ley de desintegración radiactiva, decayendo a un valor constante del orden de 20 Bq/Kg . Este valor coincide con la actividad específica aproximadamente constante que presentan el ^{214}Pb y el ^{214}Bi (isótopos en equilibrio secular con el $^{210}\text{Pb}_{\text{sup}}$). La diferencia entre la actividad del ^{210}Pb total y las actividades promediadas del ^{214}Pb y el ^{214}Bi (para cada profundidad) dio como resultado la actividad del $^{210}\text{Pb}_{\text{exc}}$. Esto es lo que se representa en la Figura 30. Para los perfiles correspondientes a los tres isótopos ^{214}Pb y ^{214}Bi , se observa un comportamiento muy similar en ambos testigos.

Por otro lado, mediante el perfil del ^{137}Cs de la Figura 29, es posible obtener una primera estimación de la tasa de acumulación sedimentaria mediante el método de datación por ^{137}Cs explicado anteriormente. El máximo de la figura se tiene para una profundidad de 17.5 cm aproximadamente. Este máximo correspondería al año 1964 (hace 50 años), por lo que, mediante este método, se tendrá una tasa promedio de acumulación sedimentaria:

$$s = \frac{x}{t} = \frac{17.5}{50} = 0.35 \text{ cm} \cdot \text{a}^{-1}$$

Para el caso del $\text{NaI}(\text{TI})$, no tenemos datos acerca del perfil de ^{210}Pb , y por lo tanto no podemos continuar con la aplicación de los modelos con este detector. A la vista de los perfiles de la Figura 31, es evidente que este tipo de detector no nos proporciona la precisión necesaria en este trabajo, y por tanto continuaremos a partir de ahora únicamente con los datos obtenidos del HPGe. Sin embargo, nos han permitido obtener una actividad asociada al ^{232}Th y sus descendientes que es compatible con la obtenida con el HPGe, como se puede ver comparando las Figuras 28 y 31. Así como contrastar la actividad para los descendientes del ^{238}U , en las Figuras 29 y 32.

4.5. Aplicación de los modelos CRS y CIC al perfil obtenido

Para simplificar la aplicación de estos modelos hemos supuesto una densidad de valor constante con la profundidad, aunque al suponer densidad constante, la tasa de acumulación sedimentaria va a resultar independiente del valor de la densidad, como se comprueba al comparar las ecuaciones (41) y (34).

En primer lugar realizamos el ajuste propuesto por el modelo CIC (expresión (29)) al perfil obtenido para el $^{210}\text{Pb}_{\text{exc}}$. Obteniéndose los ajustes presentados en la Figura 33:

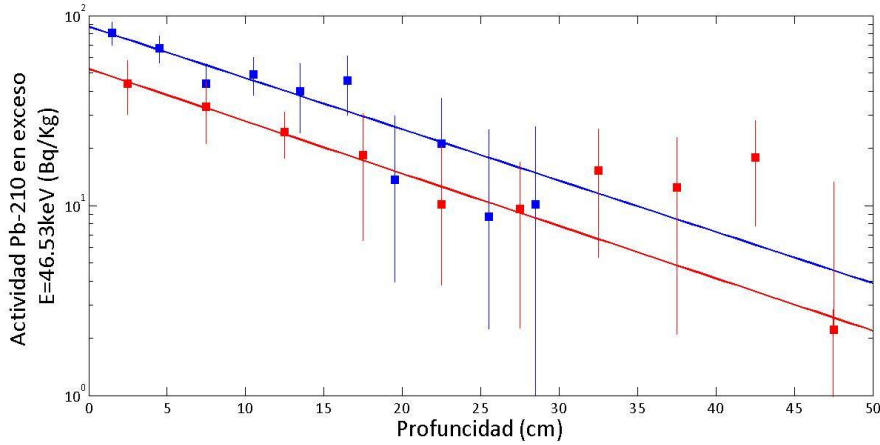


Figura 33. Se representa en escala logarítmica la actividad de $^{210}\text{Pb}_{exc}$ en función de la profundidad. Se han ajustado los datos a una recta. (Para el ajuste se han tenido en cuenta los puntos de profundidad menor de 25 cm).

Del ajuste a una recta se obtienen los valores de la pendiente:

$$\eta_a = -0.070 \pm 0.016 \text{ cm}^{-1}$$

$$\eta_b = -0.070 \pm 0.007 \text{ cm}^{-1}$$

donde a se refiere la pendiente correspondiente al testigo a, y b al testigo b.

Por medio de la expresión (30) es posible obtener un valor para la tasa de acumulación sedimentaria de:

$$s_a = 0.44 \pm 0.10 \text{ cm} \cdot \text{a}^{-1}$$

$$s_b = 0.44 \pm 0.04 \text{ cm} \cdot \text{a}^{-1}$$

Se obtienen velocidades compatibles con la obtenida por el método del ^{137}Cs .

Procedemos ahora a la aplicación del modelo CRS descrito en el apartado 3.2.2. con el fin de evaluar la variación experimentada por la tasa de acumulación sedimentaria. En primer lugar para cada sección hay que obtener la edad del sedimento utilizando la expresión (40); a esa edad del sedimento se le asocia la tasa de acumulación sedimentaria correspondiente utilizando la expresión (41). El resultado se presenta en la Figura 34:

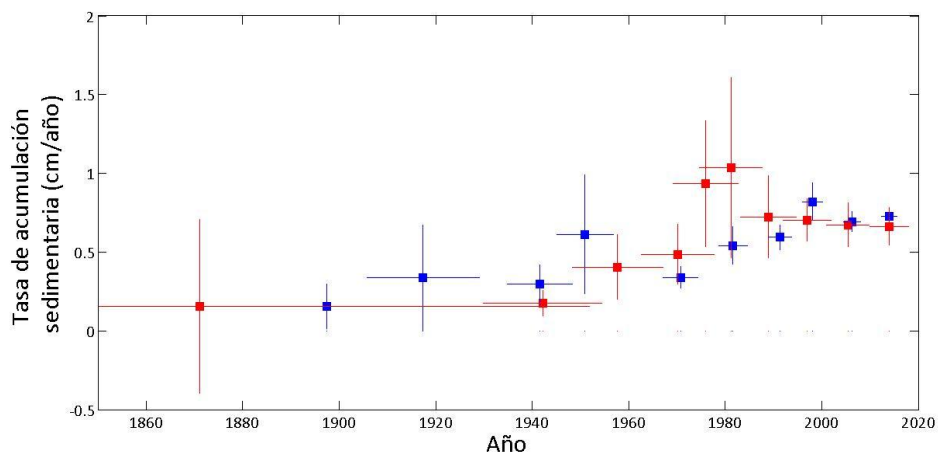


Figura 34. Tasa de acumulación sedimentaria s en función del tiempo obtenida mediante el modelo CRS. El color rojo se corresponde con el testigo b mientras que el color azul se corresponde con el testigo a. Para ambos casos, se ha tomado un error σ en lugar de 2σ .

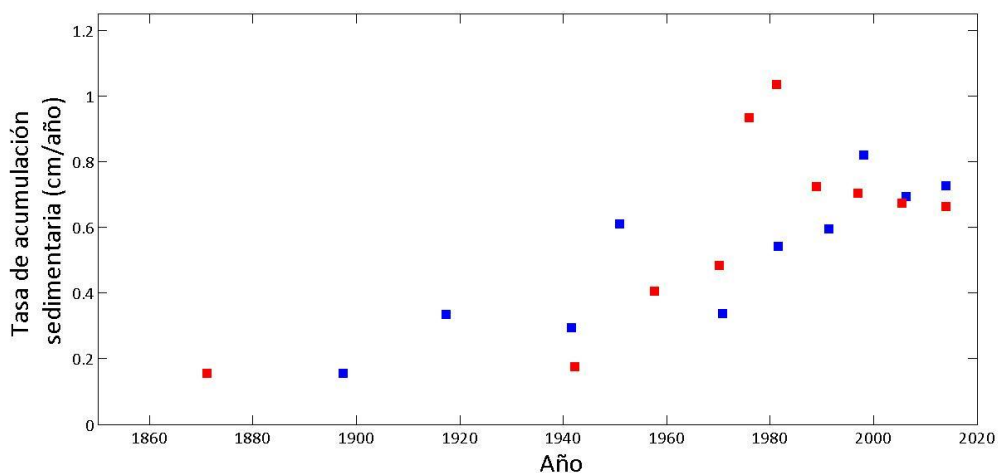


Figura 35. Tasa de acumulación sedimentaria en función del tiempo obtenida mediante el modelo CRS sin errores. El color rojo se corresponde con el testigo b mientras que el color azul se corresponde con el testigo a.

En la Figura 35 se puede observar que la tasa de acumulación sedimentaria ha experimentado un fuerte aumento (aproximadamente se ha multiplicado por un factor 10) a los largo de los últimos 150 años. Este aumento no puede ser debido a cambios de tipo climáticos, ya que no se han registrado fuertes variaciones en las precipitaciones ni ningún otro cambio relevante en el periodo de tiempo estudiado, por lo que el aumento en la tasa de acumulación sedimentaria debe ser principalmente la actividad humana [25]. El aumento de la población en las zonas cercanas al estuario y de su capacidad económica y tecnológica ha producido una mayor actividad y una mayor intervención sobre el territorio. Esta presión humana sobre el medio natural se ha manifestado en un aumento de las tasas de acumulación sedimentaria.

La tasa de acumulación sedimentaria de la Figura 35 presenta una evolución temporal muy similar a la obtenida en otros estudios realizados en diferentes estuarios de la costa cantábrica oriental [26].

A partir de la Figura 35, se ha calculado el promedio de velocidades obtenidas mediante el modelo CRS, con el fin de comparar los resultados de ambos modelos, obteniéndose los valores:

$$\bar{s}_a = 0.51 \text{ cm} \cdot \text{a}^{-1}$$

$$\bar{s}_b = 0.60 \text{ cm} \cdot \text{a}^{-1}$$

Valores muy similares a los obtenidos en el anterior modelo CIC.

5. Conclusiones

En este trabajo se han analizado algunas técnicas radiométricas de fechado sedimentario por medio de la utilización tanto de un detector de centelleo de NaI(Tl) como, y sobre todo, de un detector semiconductor coaxial de HPGe.

La técnica analizada y aplicada a dos testigos de sedimentos ha sido la del ^{210}Pb en exceso, así como la del ^{137}Cs en menor medida.

En primer lugar se realizó el calibrado en energía y eficiencia de ambos detectores, así como un análisis comparativo de la resolución de ambos sistemas.

Se han realizado medidas de la presencia de isótopos radiactivos emisores gamma para 20 muestras de sedimentos de diferentes profundidades (hasta 30 y 50 cm), correspondientes a dos testigos distintos extraídos del estuario de San Pedro del Mar (Santander).

Se ha utilizado el método de datación ^{210}Pb en exceso, lo que nos ha permitido reconstruir la historia deposicional del sedimento en los últimos 150 años. Hemos demostrado que el método únicamente se puede realizar con las medidas provenientes del detector de HPGe.

Para obtener el historial de deposición, hemos analizado nuestras medidas con dos modelos matemáticos diferentes aplicados a la concentración de $^{210}\text{Pb}_{exc}$. El primer modelo, Concentración Inicial Constante (CIC: Constant Initial Concentration), nos ha permitido obtener un valor más preciso de la velocidad de sedimentación, supuesto ésta constante. El segundo modelo, Velocidad de Aporte Constante (CRS: Constrant Rate of Supply) nos ha proporcionado información acerca de la variación de la tasa de acumulación sedimentaria en función del tiempo. Los resultados obtenidos para esta variación temporal de la tasa de acumulación están en buen acuerdo con análisis previos en otros estuarios de la costa cantábrica oriental. La velocidad promedio obtenida ha sido de 0.5 – 0.6 cm/año.

A partir del perfil de actividad específica del ^{137}Cs se hizo patente la presencia de radionúclidos artificiales en la atmósfera. Se pudo obtener un primer valor aproximado de la tasa de acumulación sedimentaria, afirmando con relativa certeza que las secciones del testigo con profundidad menor que 17.5 cm se depositaron después del año 1963.

Se propone como continuación a este trabajo la división del testigo en secciones más delgadas, con el fin de obtener un estudio más detallado de la evolución producida en la tasa de acumulación sedimentaria, así como una mejor comparación entre los perfiles obtenidos para los dos testigo utilizados.

REFERENCIAS

[1] Gunter Faure, *Principles of isotope geology*, Second Edition, Ed: John Wiley and Sons, USA, 1986.

[2] Richard B. Firestone, *Table of Isotopes CD-ROM*, Eighth Edition, Version 1.0, 1996.

Michael F. L'Annunziata, *Radioactivity: Introduction and History: Introduction and History*, Ed. Elsevier, Amsterdam, 2007.

<http://www.isus.de/acrobat/decay-chain.pdf>

[3] Glenn F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, University of Michigan, fourth edition, 2010.

[4]<http://personales.unican.es/garciaan/Grupo%20senderismo/Excursiones%202011-12/Marcha%2017-12-2011/Santander-Dunas%20de%20Lienres-Boo%20de%20Pi%C3%A9lagos.pdf>

[5] <http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/ElemTab/z32.html>

[6] <http://personales.unican.es/goicol/TEV/P6.pdf7>

[7] Antonio Ferrer Soria y Eduardo Ros Martínez, *Física de partículas y de astropartículas*, Universidad de Valencia, 2005.

[8] Organismo internacional de energía atómica, OIEA, *Glosario de seguridad tecnológica del OIEA, Terminología empleada en seguridad tecnológica nuclear y protección radiológica*, Edición de 2007, <http://www->

pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/IAEASafetyGlossary2007/Glossary/SafetyGlossary_2007s.pdf

[9] Páll Theodórsson, *Measurement of Weak Radioactivity*, World Scientific, Science Institute, University of Iceland, Iceland. 1996.

[10] Fernando Finestres Zubeldia, *Protección en radiología odontológica*, Universidad de Barcelona, Textos docentes 369.

[11] *Scintillation Detectors, Particle Detection via Luminiscence*. http://www.kip.uni-heidelberg.de/~coulon/Lectures/Detectors/Free_PDFs/Lecture4.pdf

[12] Charles Kittel, *Introducción a la física del estado sólido*, 3ª Edición, Editorial Reverté, Barcelona, 2003.

[13] Paul Hlawiczka, *Introducción a la electrónica cuántica*, Ed. Reverté, Barcelona, 1977.

[14] Bicron, *Scintillation Detector Operating Manual*, Saint-Gobain Industrial Ceramics. <http://www.qsl.net/k0ff/Preamps/opermnl.pdf>

[15] <http://nucleus.iaea.org/rpst/ReferenceProducts/ReferenceMaterials/Radionuclides/IAEA-RGU-1.htm>

[16] <http://nucleus.iaea.org/rpst/ReferenceProducts/ReferenceMaterials/Radionuclides/IAEA-RGTh-1.htm>

[17] F Mireles, B Leal, LL Quirino y C Montaña, *Estudio de los Emisores Gamma del Suelo de la Región Temporalera de Río Grande*, Unidad de Estudios Nucleares de la UAZ, Centro de Bachillerato Tecnológico Agropecuario, 2003.

[18] Hernán Furci, *Fechado de un testigo sedimentario del lago Rivadavia mediante las técnicas de Pb-210 y Cs-137*, San Carlos de Bariloche, 2010.

[19] http://caebis.cnea.gov.ar/IdEN/CONOC_LA_ENERGIA_NUCX/CAPITULO_6_Difusion/CICLO_COMB_NUCL/El_uranio.htm

[20] J.P. Bernal, L.E. Beramendi Orosco, K.C. Lugo-Ibarra, L. Walter Daesslé. *Revisión a algunos geocronómetros radiométricos aplicables al Cuaternario*, Boletín de la Sociedad Geológica Mexicana, Volumen 62, número 3, 2010.

[21] Sandor Mulsow, Bernand P. Boudreau and John N, Smith, *Bioturbation and porosity gradients*, Limnology and Oceanography, 1998.

[22] E. L. Cussler, *Diffusion. Mass Transfer in Fluid Systems*, Third edition, Cambridge University Press, 2009.

[23] A. Martínez Lobo, L. Romero y J. Palomares, *Datación de sedimentos marinos mediante Pb-210 y Cs-137*, Instituto PRYMA, CIEMAT, 1990.

[24] Charles W. Holmes, *Short-Lived Isotopic Chronometers. A Means of Measuring Decadal Sedimentary Dynamics*, USGS Science for Changing World, U.S. Geological Survey, 1998.

[25] V. Maria Bruschi et al. *¿Existe un cambio geomorfológico global acoplado a la actividad económica?*, Contribuciones científicas en Memoria del profesor Jesús Soto Torres, Ediciones de la Universidad de Cantabria, 2008.

[26] M. J. Irabien et al. *Evolución histórica reciente de las tasas de sedimentación en la costa del Cantábrico oriental*. Contribuciones científicas en Memoria del profesor Jesús Soto Torres, Ediciones de la Universidad de Cantabria, 2008.