



Facultado de Ciencias

*Trabajo Fin de Carrera
Licenciatura en Físicas*

**Determinación de elementos
radiactivos en muestras de
carbón mineral natural e
incinerado mediante
detectores INa(Tl) y GeHP**

Autor: Laura Incera San Emeterio

Director: Saturnino Marcos Marcos

Fecha: Octubre de 2015

Índice

1. Introducción.....	4
2. Elementos Radiactivos en la Corteza Terrestre	5
2.1 Formación de la Tierra: Elementos Procedentes de Nucleosíntesis en las Estrellas.....	5
2.2 Elementos radiactivos naturales, procedentes de tres series principalmente: ^{235}U , ^{238}U y ^{232}Th más el ^{40}K	7
3. El Carbón.....	8
3.1 Formación del Carbón.....	8
3.2 Tipos de Carbón.....	8
3.3 Combustión del Carbón en Centrales Térmicas	9
3.4 Elementos Radiactivos en el Carbón y en sus Cenizas	11
3.5 Impacto Ambiental e Impacto en la Salud de los Elementos Radiactivos Asociados a la utilización de carbón	13
4. Equipo de Espectrometría Gamma	14
4.1 Detectores y equipos de detección.....	14
4.1.1 Detector de Centelleo NaI(Tl).....	17
4.1.2 Detector Semiconductor.....	18
4.1.3 Calibración	19
5. Determinación de la Actividad Absoluta de un Emisor de Radiación Gamma	20
5.1 Caso de fotopicos aislados	20
5.2 Caso de varios fotopicos solapando correspondientes a fotones emitidos en la desexcitación de un mismo núcleo:.....	23
5.3 Caso de dos fotopicos solapando correspondientes a fotones emitidos en la desexcitación de dos núcleos diferentes	24
5.4 Actividad mínima detectable (AMD)	25
5.5 Cálculo del número de cuentas netas de un fotopico.....	27
5.6 Errores Asociados a la Determinación de la Actividad de la Muestra	30
6. Resultados	31
6.1 Elección de fotopicos para el análisis de la actividad del ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K	31
6.2 Actividad mínima detectable	32
6.3 Actividades del ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K	33
6.3.1 Determinación de la actividad del ^{238}U con el detector de GeHP.....	33
6.3.2 Determinación de la actividad del ^{232}Th con el detector de GeHP	33
6.3.3 Determinación de la actividad del ^{238}U con el detector de INa(Tl)	36

6.3.4 Determinación de la actividad del ^{232}Th con el detector de INa(Tl).....	37
7. Conclusiones.....	39
8. Apéndice A.....	41
9. Apéndice B.....	46
10. Bibliografía	52

1. Introducción

Los componentes de la corteza terrestre presentan radiactividad debida, fundamentalmente, a la presencia de radionúclidos de las tres series radiactivas naturales (del ^{238}U , ^{232}Th y ^{235}U) y al ^{40}K . El carbón, como roca sedimentaria, contiene elementos radiactivos naturales en concentraciones similares, en la mayoría de los casos, a otras rocas sedimentarias presentes en la tierra.

El objetivo de este trabajo es la determinación de emisores radiactivos en el carbón mineral natural, en sus diferentes tipos, proveniente de varias minas españolas de Colombia y Sudáfrica, así como en muestras de carbón incinerado. Para estudiar el efecto de la incineración, hemos solicitado a varias centrales térmicas españolas muestras de carbón y cenizas procedentes del quemado de carbón similar, pero únicamente hemos podido disponer de muestras de las centrales térmicas de Allares (León) y los Barrios (Cadiz). Hunosa, nos ha suministrado también carbón y cenizas de carbón obtenidas por un procedimiento de quemado más tradicional, en una estufa, iniciando la combustión mediante resistencias eléctricas. En el trabajo se analizará la emisión gamma de las diferentes muestras utilizando detectores de INa(Tl) y de GeHP . Para la determinación de la actividad radiactiva de un determinado emisor es necesario conocer las probabilidades de emisión gamma relevantes de este elemento por desintegración. En el presente trabajo se han revisado y puesto al día dichas probabilidades de acuerdo con los datos publicados en la revista Nuclear Data Sheets.

Aunque el carbón contiene concentraciones pequeñas de elementos radiactivos, los procesos industriales a los que el carbón puede estar sometido, como el incinerado, pueden concentrar o diseminar éstos, por lo que es conveniente un seguimiento radiológico apropiado.

2. Elementos Radiactivos en la Corteza Terrestre

2.1 Formación de la Tierra: Elementos Procedentes de Nucleosíntesis en las Estrellas

El proceso evolutivo que genera los elementos naturales que encontramos hoy en la tierra tiene su origen, según la teoría aceptada, en el “Big Bang”. Partiendo de esta hipótesis, se admite, que poco tiempo después del Big Bang, se forman los nucleones, neutrones y protones. A partir de estos, cuando la temperatura ha descendido lo suficiente, se pueden formar núcleos de deuterio, que “sobreviven” a la disociación al ir disminuyendo los fotones de alta energía. Se estima que esto comienza a ocurrir cuando se alcanza una temperatura de unos 9×10^8 K, a unos 250 s del Big Bang. La presencia de núcleos de deuterio en proporción suficiente permite la formación de otros núcleos ligeros como los de ^3H , ^4He , ^7Li , ^7Be , ya que tienen una energía de ligadura por nucleón mayor que el núcleo de ^2H . El conjunto de procesos nucleares que lleva a la formación de estos núcleos en el comienzo del universo se conoce como nucleosíntesis primordial.

La formación de núcleos más pesados, al menos para un número másico $A \leq 60$, se admite que se realiza, generalmente, a través de reacciones de fusión con partículas α y protones (p). Estas reacciones requieren la superación de una determinada barrera de Coulomb. La energía cinética necesaria para superar esta barrera se consigue a partir de la energía potencial gravitatoria en el seno de una estrella.

Debido al fuerte incremento de la repulsión electrostática de los protones en el núcleo al ir aumentando el número de estos (Z) y, consecuentemente A, los núcleos más estables son aquellos con $A \approx 60$. Esto significa que las reacciones de fusión requeridas para la generación de núcleos más pesados son reacciones fuertemente endotérmicas. Consecuentemente, la formación de núcleos con $A > 60$ se lleva a cabo, fundamentalmente, a través de reacciones de captura de neutrones. El proceso se denomina de tipo s cuando es suficientemente lento para que los elementos inestables frente a la desintegración β^- involucrados en la reacción se desintegren antes de haberse producido la captura neutrónica. En esta situación, la captura de neutrones se produce por los núcleos descendientes (más estables frente a desintegración β^-) hasta que la proporción N/Z en los isótopos resultantes aumenta lo suficiente para ser también inestable frente a desintegración β^- y se vuelve a repetir el proceso.

Por el contrario, el proceso se denomina de tipo r cuando el tiempo de captura es mucho más rápido que el tiempo necesario para la desintegración β^- . En una estrella en condiciones normales, los flujos de neutrones son pequeños y los procesos habituales son de tipo s. Los procesos de tipo r requieren condiciones especiales, como las que se piensa que ocurren en explosiones de tipo supernova, en las que el flujo de neutrones aumenta considerablemente. La Figura 1 ilustra estos procesos en algunos ejemplos.

Algunos núcleos pueden ser formados solo a través de procesos *s* o *r*, mientras que otros pueden ser formados por ambas vías.

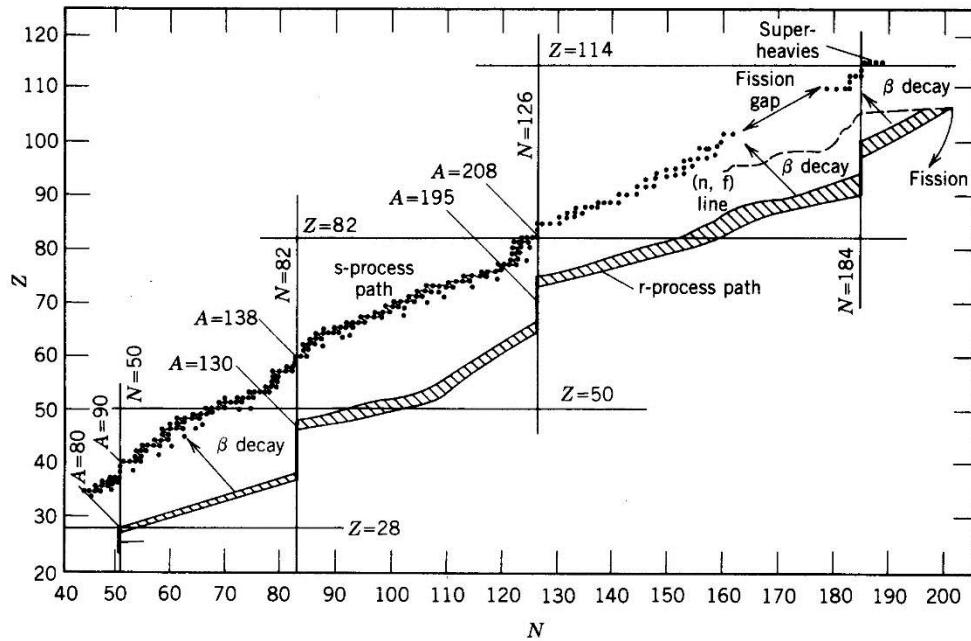


Figura 1: Ejemplos de procesos tipo *r* y tipo *s*. [1]

Los elementos más pesados que el ^{209}Bi sólo pueden ser formados mediante procesos de tipo *r*, ya que los núcleos estables por emisión $\beta^\pm$ con $A=210$ y $A=211$ se desintegran por emisión α con una vida media relativamente pequeña en comparación con las tiempos de captura neutrónica (los núcleos descendientes del ^{209}Bi formados mediante captura neutrónica forma un “camino” cerrado que acaba en el ^{209}Bi de nuevo). La formación de elementos radiactivos como el ^{235}U , ^{238}U y el ^{232}Th que dan origen a las tres series de elementos radiactivos naturales tiene lugar mediante procesos de tipo *r* (ver Figura 2).

3. El Carbón

3.1 Formación del Carbón

El carbón está compuesto de materia orgánica, ya que es el resultado de un proceso que se inicia con la acumulación de grandes cantidades de restos vegetales. Un ambiente que permite esas acumulaciones es el ambiente pantanoso ya que, al ser pobre en oxígeno, evita la descomposición completa u oxidación de la materia orgánica.

Por otra parte, las plantas son atacadas por bacterias anaerobias, que pueden vivir en ausencia de oxígeno, aumentando gradualmente el porcentaje de carbono. Las bacterias no pueden terminar la descomposición de la materia orgánica porque son destruidas por los ácidos liberados por las plantas. Esta descomposición parcial crea una capa de turba que con el enterramiento somero se va transformando lentamente en lignito, un tipo de carbón marrón y blando.

El enterramiento provoca un aumento de la presión y de la temperatura. Las temperaturas más elevadas producen reacciones químicas dentro de la materia vegetal produciendo agua y gases orgánicos que se escapan al aumentar la carga por el depósito de más sedimentos, aumentando así la concentración de carbono. El enterramiento provoca la compactación del carbón, dando lugar a la hulla.

El lignito y la hulla son rocas sedimentarias. Cuando las capas de sedimentación son sometidas a plegamientos y deformaciones asociadas con la formación de montañas, el calor y la presión inducen la pérdida adicional de elementos volátiles y agua, incrementando aún más la concentración de carbono, transformándose la hulla en antracita, que es el combustible de carbón de mayor valor calorífico.

Este proceso geológico de formación de materiales con contenido creciente en carbono a partir de materiales orgánicos que se encuentran en la corteza terrestre, por una transformación gradual a temperaturas moderadas (alrededor de 250°C) y altas presiones recibe el nombre de carbonificación.[2]

3.2 Tipos de Carbón

Como se ha explicado en el subapartado anterior, durante el proceso de carbonificación se pueden obtener diferentes tipos de carbón según el contenido en carbono:

- *Turba*. Aparece en la primera etapa de la formación del carbón. Tiene un bajo contenido de carbono (fracción residual del carbón, en tanto por ciento, una vez descontados el contenido de agua (humedad), las materias volátiles y las cenizas), inferior al 60%, y un alto índice de humedad.

- *Lignito*, cuyo contenido en carbón se sitúa entre el de la turba y la hulla, entre un 60% y un 75%. Es muy frecuente en Europa del Este y nuestro país.
- *Hulla*. Tiene un contenido mayor de carbono, entre un 75% y 85%, con un poder calorífico superior al del lignito. Se produce a partir del lignito en condiciones alcalinas y anaerobias.
- *Antracita*. Es el tipo de carbón con mayor contenido de carbono y menor contenido de material volátil. Contiene, aproximadamente, un 87,1% de carbono, 9,3% de cenizas y 3,6% de materia volátil. Libera una gran cantidad de energía al quemarse.[3]

3.3 Combustión del Carbón en Centrales Térmicas

Desde el punto de vista técnico, para que se origine un proceso de combustión tiene que ocurrir que la velocidad de oxidación sea lo bastante alta para que el calor desprendido en la reacción sea suficientemente elevado para mantener así la combustión.

La tecnología asociada al proceso de combustión del carbón comenzó a desarrollarse, fundamentalmente, en el siglo XIX. En este periodo aparece, primeramente, el sistema de quemado de carbón sobre rejilla y, posteriormente, el quemado de carbón pulverizado. En los años treinta del siglo XX, aparece un nuevo procedimiento de quemado de carbón mezclando este con piedra caliza para formar una especie de fluido a través del cual se filtra aire a presión.

En una central térmica de quemado de carbón pulverizado, previamente a su combustión, el carbón se pulveriza mediante molinos para aumentar la superficie de contacto con el aire. Posteriormente, con o sin combustibles secundarios, se inyecta dentro del horno mediante una corriente de aire caliente a alta velocidad y, estando en suspensión, se quema a una temperatura de $1500 \pm 200^\circ\text{C}$, que está por encima del punto de fusión de la mayoría de los minerales presentes. Durante el proceso, las partículas inorgánicas no sufren una combustión completa, y se producen partículas de ceniza. Las reacciones que se originan dependen no solamente de la temperatura, sino también del tipo de carbón, la finura de molido, etc. En la Tabla 1 damos algunas de las principales reacciones que tienen lugar cuando se quema mineral de carbón con su calor de reacción correspondiente:

Reacciones	Calor de Reacción aproximado (en kJ por mol del compuesto final)
$C + O_2 \rightarrow CO_2$	-393
$C + 1/2 O_2 \rightarrow CO$	-111
$CO + 1/2 O_2 \rightarrow CO_2$	-282
$C + CO_2 \rightarrow 2CO$	+176
$H_2 + 1/2 O_2 \rightarrow H_2O$	-58

Tabla 1: Algunas reacciones típicas que ocurren en la combustión del carbón y la reacción del hidrógeno con oxígeno con su correspondiente calor de reacción (definido aquí como la energía cedida al sistema).

En la Figura 3 se indican algunos procesos que ocurren en el quemado de partículas de carbón. En general, una partícula de carbón contiene una parte, “ash”, que al aumentar la temperatura se volatiliza. Otra parte contiene compuestos orgánicos que vienen representados en la figura como C_xH_y . La parte no volátil que contiene un mayor contenido de carbón recibe el nombre de “char”. En la figura se indican algunos procesos que pueden ocurrir con las partes no volátiles.

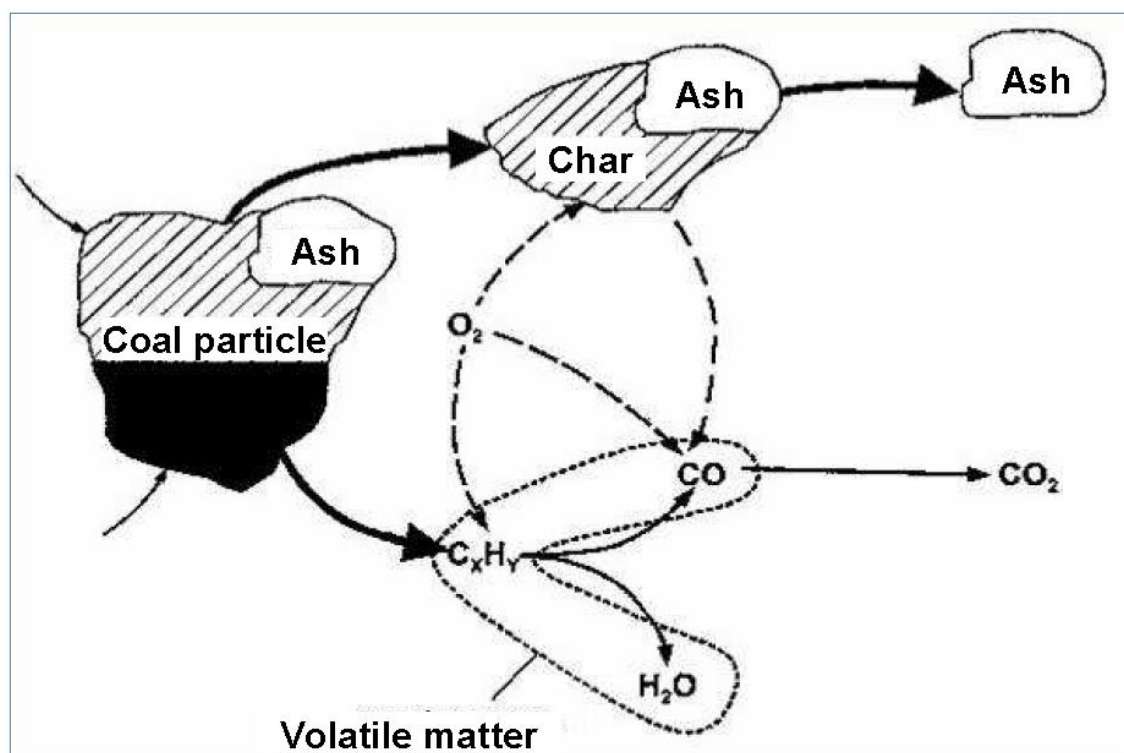


Figura 3: Distintos procesos en el quemado de partículas de carbón

3.4 Elementos Radiactivos en el Carbón y en sus Cenizas

Los combustibles fósiles como el carbón suelen contener cantidades significativas de isótopos de las series del ^{238}U y del ^{232}Th y de ^{40}K . Aunque la presencia de elementos radiactivos en el carbón no son, en sí, un problema, se debe tener en cuenta que la concentración de estos puede aumentar considerablemente cuando el carbón se quema. Las concentraciones de isótopos naturales en las cenizas y otros residuos de la combustión están relacionadas con las concentraciones isotópicas existentes en el carbón de origen. La combustión del carbón da por resultado una reducción de masa del 80-95%, obteniéndose cenizas que

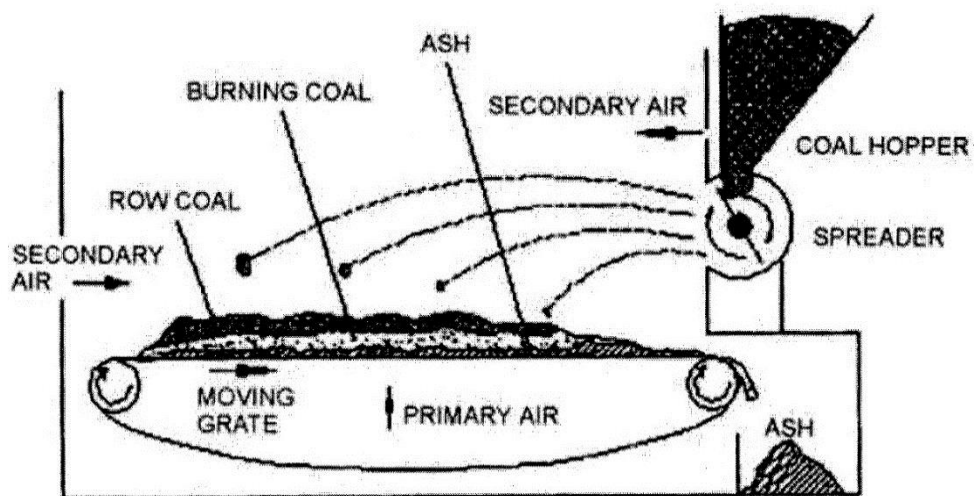


Figura 5: Esquema de un posible esparcidor de carbón en una central térmica[4]

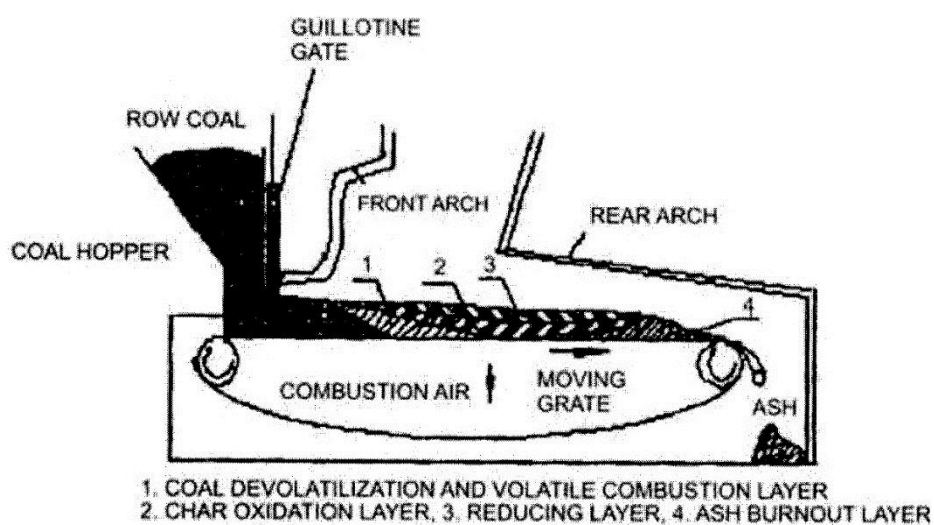


Figura 6: Esquema de un posible mecanismo de alimentación de carbón en una central térmica[4]

contienen la gran mayoría del material radiactivo original, pero ahora en una concentración mayor. Típicamente, el 100% del gas radón presente en el carbón se transfiere a la fase gaseosa y se pierde en las emisiones. Por el contrario, los elementos menos volátiles como el torio, el uranio y la mayoría de los productos a los que decaen pueden retenerse en gran medida en los restos sólidos de la combustión. Así, los isótopos contenidos en el carbón pueden ser concentrados en la ceniza, en un factor que puede variar, aproximadamente, desde 3.5 a 85. En la Tabla 2 se recogen algunos resultados orientativos para los elementos radiactivos más comunes.[5]

Muestra	Concentraciones isotópicas Bq/kg							
	^{238}U	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{226}Ra	^{228}Th	^{40}K
Carbón	20	20	20	20	20	20	20	50
Cenizas	200	240	930	1700	70	130	110	235
Cenizas/ Carbón	10	12	46.5	85	3.5	6.5	5.5	4.7

Tabla 2. Actividades isotópicas típicas en carbón y cenizas volantes

La mayoría del torio presente en el carbón está contenido en minerales comunes de fosfato como monacita o apatita. Por el contrario, el uranio se encuentra tanto en mineral como en fracciones orgánicas de carbón. Se puede ir añadiendo poco a poco algo de uranio a través del tiempo geológico porque la materia orgánica puede retener parte del uranio disuelto de las aguas subterráneas. En las cenizas del quemado del carbón, el uranio está más concentrado en las partículas finas. Si durante la combustión del carbón cierta cantidad de uranio se concentra en la superficie de las partículas de ceniza, como un condensado, entonces este uranio unido a la superficie es potencialmente más susceptible a la lixiviación. Sin embargo no se ha encontrado una evidencia del enriquecimiento superficial de uranio en los cientos de partículas de ceniza examinados por los investigadores de United States Geological Survey (USGS). [6]

De la Tabla 2, se desprende que los isótopos que más se concentran en la combustión del carbón son el ^{210}Pb y el ^{210}Po . La concentración del primero de ellos puede ser determinada, en principio, a través de la radiación de 46.54 keV que se emite al desintegrarse el ^{210}Pb . La desintegración del ^{210}Po produce emisión α pero no fotones, por lo que no es posible determinar la presencia de ^{210}Po a través de espectrometría gamma. La determinación de ^{210}Po mediante espectrometría α es posible pero más complicada, debido a las condiciones muy restrictivas necesarias para una adecuada preparación de las muestras. Además, la muestra puede contener solamente una pequeñísima cantidad de material para evitar la atenuación de las partículas α en la propia muestra, lo que dificulta la realización de medidas con incertidumbre suficientemente pequeña.

3.5 Impacto Ambiental e Impacto en la Salud de los Elementos Radiactivos Asociados a la utilización de carbón

Los elementos radiactivos del carbón y de las cenizas podrían entrar en contacto con el público en general cuando se dispersan en el aire y en el agua o se incluyen en productos comerciales que contienen cenizas.

Unos estudios realizados entre 1975 y 1985 evaluaron el impacto de la radiación de las emisiones a la atmósfera de centrales de carbón. Estos estudios concluyeron que la dosis máxima que puede recibir una persona a 1km de distancia de una central típica varía, se sitúa entre 1% y 5% por encima de la radiación natural del entorno. Para personas que viven más lejos de la central, la dosis es considerablemente menor.[5]

4. Equipo de Espectrometría Gamma

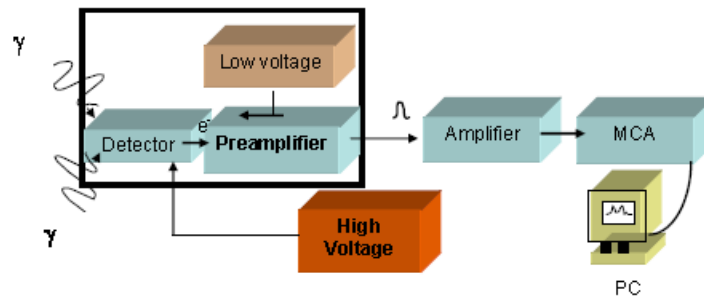


Figura 7: Componentes básicos de un equipo de espectrometría gamma.

4.1 Detectores y equipos de detección

El detector es un elemento esencial en un equipo de espectrometría gamma. En él interacciona la radiación gamma que queremos detectar en el proceso de medida mediante alguno de los procesos siguientes: *efecto fotoeléctrico*, *Compton* y *producción de pares* (para $h\nu > 2mc^2$), como se indica en la Figura 8. Estas interacciones son aprovechadas por el equipo de medida para generar un pulso eléctrico que recoge la información de la energía cedida por la radiación electromagnética en el detector.

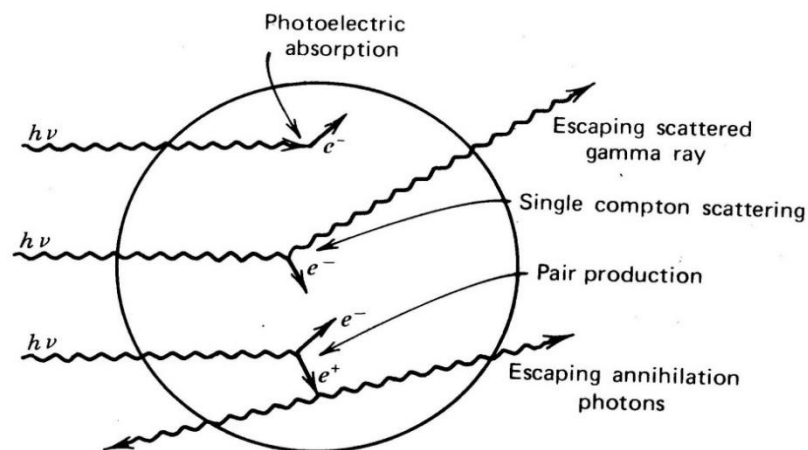


Figura 8: Interacción de fotones de energía $E = h\nu$ en el detector.

En este trabajo utilizaremos dos tipos de detectores: un centelleador formado por un cristal de ioduro sódico activado con Tl [INa(Tl)] y un detector formado por un semiconductor de Ge de alta pureza [GeHP].

Fotomultiplicador: Es un tubo que incluye un fotocátodo que se activa por la luz visible proveniente del detector y desprende electrones por efecto fotoeléctrico. Estos son acelerados hacia los dínodos (plaquitas metálicas) conectados a un potencial eléctrico creciente que, al colisionar con ellos un electrón, desprenden electrones secundarios (unos 5 e^- útiles, en promedio, por e^- incidente). Así, en el último dínodo (que puede hacer las funciones de ánodo (A)) se recogen del orden de 5^{9-14} electrones formando un pulso de intensidad I (Figura 9).

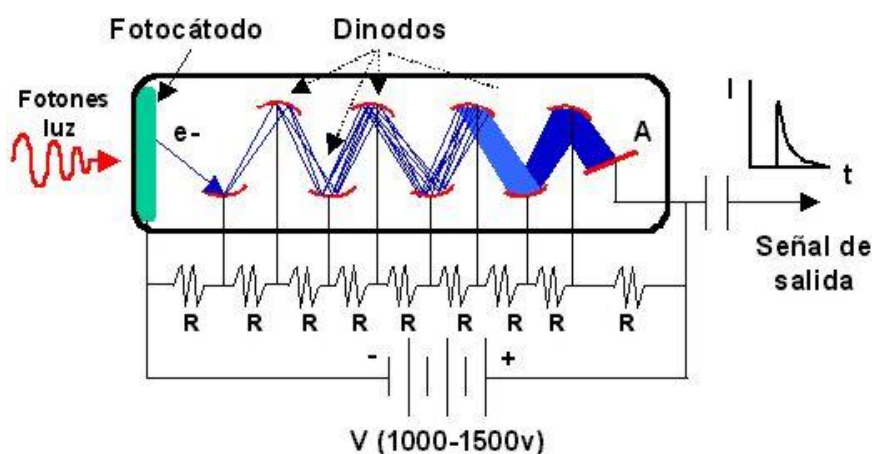


Figura 9: Fotomultiplicador

Base del fotomultiplicador-Preamplificador: Distribuye la tensión proveniente de una fuente de alta tensión (FAT) a los diferentes componentes del fotomultiplicador, acopla las impedancias entre la salida del fotomultiplicador y la entrada al amplificador y genera una señal de voltaje a la salida. Esta señal depende de la intensidad de salida del fotomultiplicador con detectores de centelleo o de la carga total integrada generada en los sistemas de detección con detectores de semiconductores.

Amplificador: Amplifica el pulso de tensión que le llega del preamplificador, dándole, al mismo tiempo, una forma más suave, de manera que su amplitud sea, en la medida de lo posible, proporcional a la energía cedida por la partícula que interactuó con el detector y generó dicho pulso.

MCA (“Multichannel Analyzer” o Analizador Multicanal): Mide la amplitud del pulso de voltaje que le llega proveniente del amplificador (Figura 10) y añade una “cuenta” a un “canal” (o memoria) cuyo n° es proporcional a la amplitud del pulso analizado (Figs. 11a y 11b). Cuando este proceso se realiza muchas veces con diferentes pulsos, se genera un histograma en el que en el eje de ordenadas se representa el número de sucesos registrados (número de cuentas) y en el eje de abscisas el n° de canal (relacionado con la amplitud de voltaje del pulso analizado) (Figura 12).

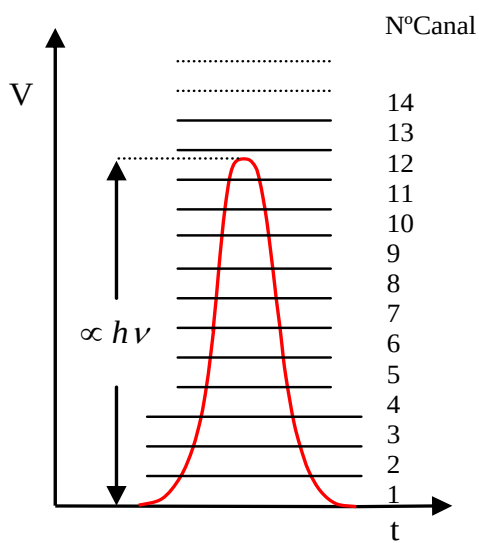


Figura 10. Pulso de voltaje a la salida del amplificador

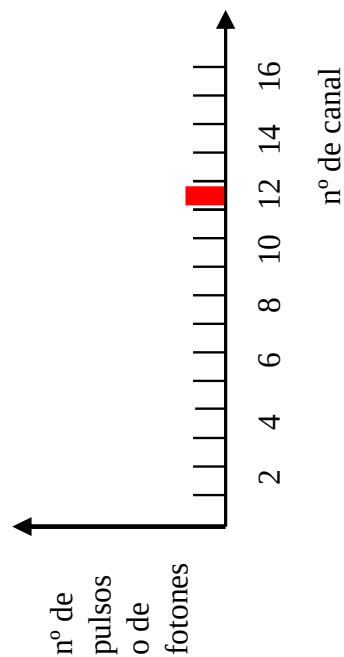


Figura 11a. Almacenamiento y representación del pulso de la Figura 10 en el MCA

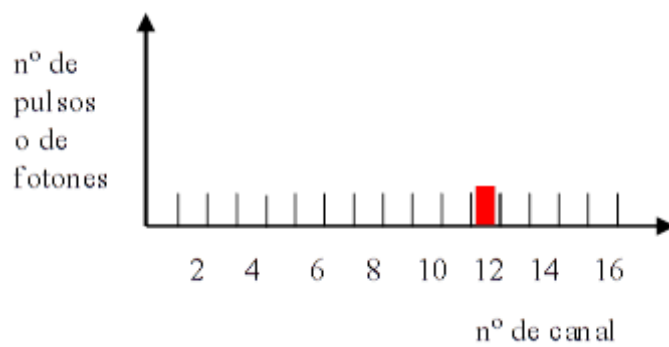


Figura 11b. Almacenamiento y representación del pulso de la Figura 10 en el MCA

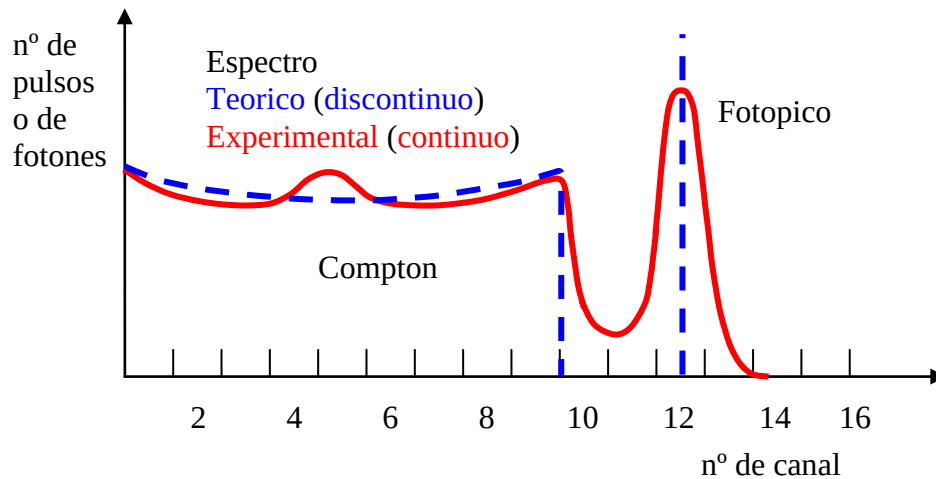


Figura 12. Representación del “espectro” gamma de los fotones monoenergéticos de una fuente radiactiva en un MCA

4.1.1 Detector de Centelleo NaI(Tl)

Este detector consta de una sustancia luminiscente que absorbe fotones de alta energía y se desexcita en un tiempo corto (< 1 microsegundo) emitiendo luz en el visible (fundamentalmente). Cuando recibe un fotón de suficiente energía $h\nu$ (rayo gamma), pueden ocurrir alguno de los tres tipos de interacciones mencionados más arriba: *efecto fotoeléctrico*, *Compton* o *producción de pares*. En el primer caso, el fotón es absorbido completamente por un e^- atómico y éste es expulsado del estado en el que se encontraba con una energía cinética $E_{ef} = h\nu - E_{eb}$, donde E_{eb} representa la energía de ligadura del e^- ($E_{eb} \ll h\nu$). Este e^- primario produce nuevas ionizaciones con la emisión de e^- secundarios, excitándose el detector. El detector vuelve a su estado inicial emitiendo luz en el espectro visible (fundamentalmente), con una E total $\propto h\nu$, aproximadamente. Esta luz es reflejada en las caras espejadas del detector y acaba incidiendo buena parte de ella sobre el fotocátodo del fotomultiplicador, como se explica más adelante, produciendo el desprendimiento de una cascada de e^- .

Cuando se produce efecto Compton, el fotón cede únicamente parte de su energía $h\nu$ al electrón (E_{eC}). Ésta depende del ángulo (θ) que forman los fotones incidente (γ) y saliente (γ') y es (generalmente) suficiente para expulsar a un e^- de su “órbita” con capacidad para producir

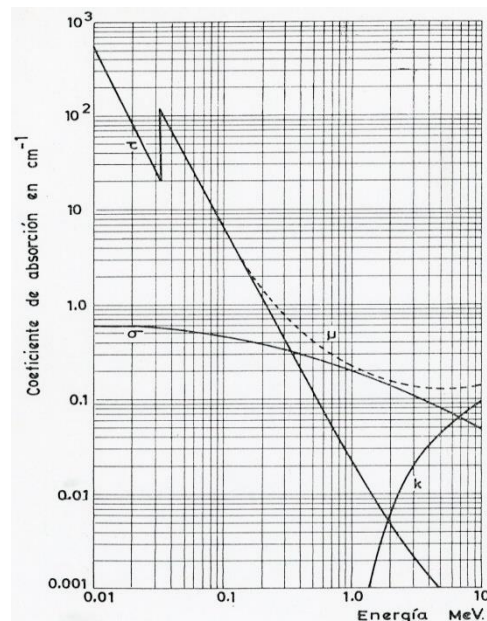


Figura 13. Coeficiente de absorción de radiación electromagnética en un cristal de INa

ionizaciones secundarias: $E_{eC} = h\nu - h\nu'$, donde

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{mc^2}(1 - \cos \theta)}.$$

La desexcitación del detector genera luz visible como en el caso del efecto fotoeléctrico, pero con menor energía total $\propto E_{eC}$, y desencadena también la emisión de una cascada de e^- en el fotocátodo del fotomultiplicador. La Figura 13 muestra que el efecto Compton se hace más probable que el efecto fotoeléctrico para energías mayores que unos 350 keV.

Como se ha dicho, para $h\nu > 2mc^2$, se pueden crear pares electrón-positrón, sin embargo, para energías $h\nu < 2$ MeV, esta probabilidad es pequeña.

4.1.2 Detector Semiconductor

Un material semiconductor se comporta como conductor o como aislante dependiendo de factores como el campo eléctrico o magnético, la radiación que le incide, la presión o la temperatura. Estos materiales presentan una estructura de bandas en la que a una temperatura de $T=0$ K todos los estados de la banda de valencia están llenos y todos los estados de la banda de conducción están vacíos. Entre ambas bandas existe una banda de energías prohibida.

Cuando aumentamos la temperatura, los electrones de la banda de valencia adquieren suficiente energía como para saltar la banda prohibida y llenar los huecos de la banda de conducción, dejando una carga positiva, hueco, en la banda de valencia. En esta situación, al aplicar un campo eléctrico, los electrones y los huecos se moverán en direcciones opuestas, contribuyendo ambos a la conductividad del material.

Además, el material semiconductor puede ser dopado con impurezas que aporten bien electrones o bien huecos extra, consiguiendo así un aumento de la conductividad. Se habla entonces de un semiconductor tipo n o de tipo p , respectivamente.

Para que el material semiconductor actúe como detector de radiación es necesario que forme un diodo, es decir, una unión entre un semiconductor tipo p (con abundancia de huecos en la banda de valencia) y un semiconductor de tipo n (con abundancia de electrones en la banda de conducción). Los electrones se difunden para llenar los huecos e igualar el nivel de Fermi en los dos tipos de semiconductor, lo que crea un campo eléctrico que detiene finalmente esa difusión, dando lugar a una región llamada “zona de agotamiento” o “zona de carga espacial” con un gradiente de potencial eléctrico.

Como en los detectores de centelleo, la radiación electromagnética puede interactuar en un detector de semiconductor mediante efecto fotoeléctrico, Compton y producción de pares. El coeficiente de absorción para un cristal de Ge se muestra en el Figura 14 y es cualitativamente similar al correspondiente de INa, pero inferior a él para cualquier energía. El efecto fotoeléctrico es dominante para bajas energías, hasta 150 keV, mientras que la dispersión Compton es dominante entre 150 keV y 10 MeV.

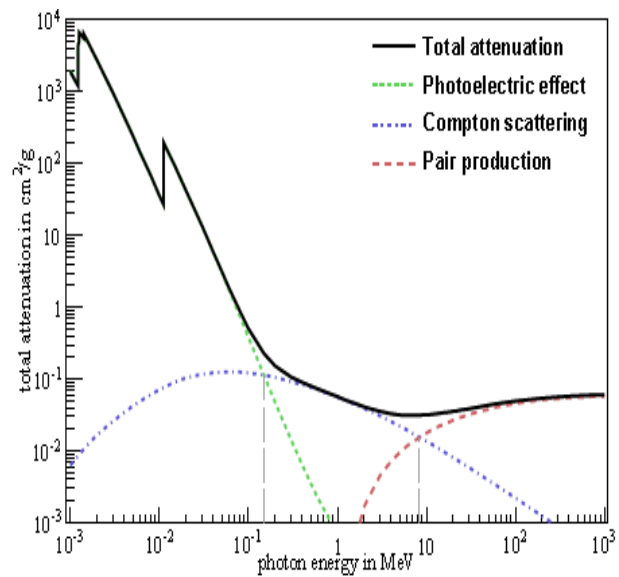


Figura 14. Coeficiente de absorción de radiación electromagnética en un cristal de Ge

Los detectores de semiconductor tienen una resolución mucho mejor que los detectores de INa(Tl) considerados anteriormente. Esto se debe, en parte, a que la energía media necesaria para crear un par electrón-hueco es considerablemente menor. Por ejemplo, para un detector de GeHP, ésta es típicamente de unos 3 eV, en contraposición a unos 20 eV para el detector de INa(Tl).

4.1.3 Calibración

Inicialmente, al realizar un espectro gamma, desconocemos qué energía corresponde a los pulsos almacenados en un determinado canal del analizador multicanal. Esto se resuelve mediante la calibración en energía del multicanal. Para ello, necesitamos una fuente que emita fotones con diferentes energías conocidas, cubriendo la región espectral de interés. Para cada fotón aparecerá un fotopico en el espectro, de forma que podemos asociar la energía del fotón al canal correspondiente que coincide con el máximo del fotopico (el fotopico es una distribución de tipo gaussiano alrededor de un canal central).

5. Determinación de la Actividad Absoluta de un Emisor de Radiación Gamma

Cuando se intenta medir la actividad gamma de una muestra, siempre se hace en presencia de una determinada actividad gamma que procede de otros elementos ajenos a la muestra. Estos pueden ser debido a materiales de construcción, a emisiones del suelo, a elementos del espacio exterior o a muestras radiactivas del propio laboratorio. La contribución de estos elementos a la actividad que medimos la denominamos “*fondo ambiental*” o simplemente *fondo*.

5.1 Caso de fotopicos aislados

En un espectro gamma en el que hay una cierta contribución debida al fondo o la muestra de análisis contiene más de un elemento emisor gamma, siempre aparecen varios fotopicos (que distinguiremos cuando sea necesario con el subíndice k). La medida del número de cuentas en estos fotopicos procedente de la muestra, una vez sustraída la contribución debida al efecto Compton asociado a otros fotopicos de mayor energía, (N_k^{Ps}) puede permitir, en ciertas condiciones y dentro de unos márgenes de error, determinar la actividad de los emisores correspondientes. Esto es posible porque cada uno de los N_k^{Ps} es proporcional a la actividad de la muestra (A). En general, la relación entre un determinado N_k^{Ps} y A puede expresarse mediante la ecuación

$$N_k^{Ps} = A f_\gamma \varepsilon_A^k t \quad (1)$$

donde f_γ representa la probabilidad de que al desintegrarse un núcleo de la muestra emita un fotón con energía E_k , ε_A^k es la eficiencia absoluta del detector para los fotones con energía E_k (esto es, la probabilidad de que un fotón con energía E_k sufra efecto fotoeléctrico en el detector para la geometría dada) y t el tiempo de medida.

En el caso ideal de una muestra puntual (S) emitiendo fotones en todas las direcciones con igual probabilidad, como se muestra en la Figura 15, para distancias $d \gg r$, ε_A^k viene dada por la expresión

$$\varepsilon_A^k = \frac{\pi r^2}{4\pi d^2} \varepsilon_i^k \quad (2)$$

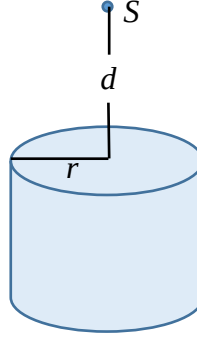


Figura 15. Sistema fuente emisor (S) y detector de geometría cilíndrica de radio r .

donde ε_i^k es la eficiencia intrínseca del detector para los fotones considerados, esto es, la probabilidad de que un fotón con energía E_k , cuya trayectoria pasa por el detector, sufra efecto fotoeléctrico en el mismo.

En nuestro caso, vamos a utilizar fuentes con geometría aproximadamente cilíndrica, conteniendo unos 50 g de carbón o residuos del quemado del mismo en forma de cenizas o escorias. En este caso, al no ser la fuente puntual, la determinación directa de las eficiencias ε_A^k es más complicada. Además, hay que tener en cuenta que algunos fotones emitidos por la muestra que se pretende analizar van a interactuar con átomos de la propia muestra, produciéndose un efecto que se denomina autoabsorción. Hacer una estimación cuantitativa de este efecto para incluirlo en el cálculo de ε_A^k no es fácil. Así, en lugar de calcular directamente ε_A^k , medimos el espectro en energías de alguna muestra apropiada suministrada por la IAEA[7-9] (que llamaremos muestra patrón), previamente analizada por algunos laboratorios de referencia, que nos dan un valor medio de la actividad radiactiva, que denominaremos A_p . El espectro de energías nos permite determinar los valores de N_k^{Ps} de esta muestra que se corresponden con A_p , y que denominaremos $(N_k^{Ps})_p$. Como los valores de f_γ se suponen conocidos, de la expresión (1), podemos escribir

$$\varepsilon_A^k = \frac{(N_k^{Ps})_p}{A_p f_\gamma t} \quad (3)$$

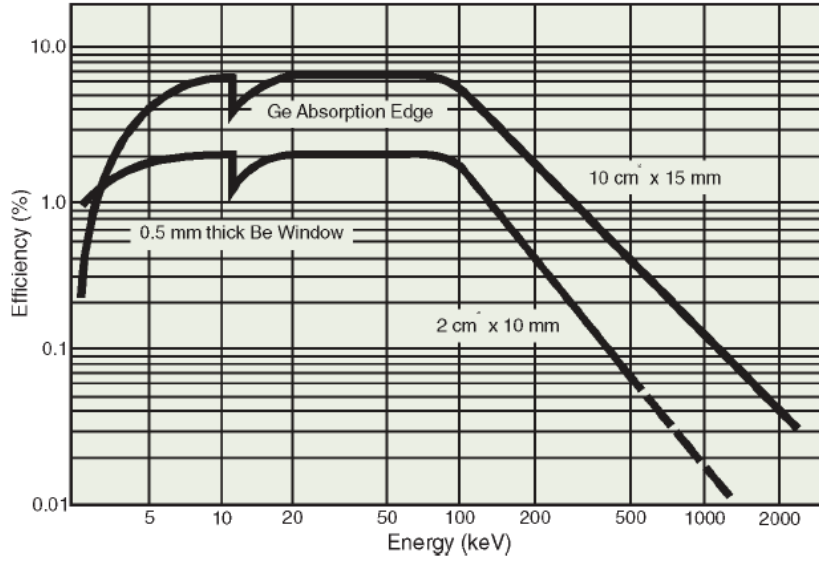


Figura 16: Curva de eficiencia típica para detectores de Germanio.

En este trabajo, queremos determinar las actividades absolutas de trazas de elementos radiactivos naturales en muestras de carbón y sus residuos, procedentes de las desintegraciones del ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th y ^{40}K . Para ello, realizamos una serie de medidas de las muestras en las que estamos interesados en condiciones lo más parecidas posibles a las llevadas a cabo con las muestras patrón de la IAEA, durante un tiempo t . Aunque la geometría de todas las muestras puede considerarse muy parecida, habrá algunas diferencias en el grado de autoabsorción, ya que la composición y densidad de las mismas son algo diferentes. Nosotros, sin embargo, consideraremos que estas diferencias son pequeñas y no las tendremos en cuenta.

Una vez determinada la eficiencia absoluta del detector ε_A^k para una determinada energía E_k a partir de la Ecuación (3), la actividad A de un determinado elemento radiactivo podemos obtenerla a partir de la Ecuación (1):

$$A = \frac{N_k^{Ps}}{f_\gamma \varepsilon_A^k t} \quad (4)$$

De acuerdo con esta expresión, todas las medidas N_k^{Ps} de los diferentes fotopicos de una muestra correspondientes a un determinado elemento radiactivo deberían llevar a un mismo valor de A , sin embargo, debido a las incertidumbres de todas las medidas esto no será exactamente así, sino que se aproximarán con un cierto margen de error.

A partir de las ecs. (3) y (4), teniendo en cuenta que las cantidades f_γ y ε_A^k son idénticas en ambas ecuaciones, si consideramos el mismo tiempo de medida t para las

muestras patrón y la muestra a estudiar, con un número de cuentas N_k^{Ps} para el fotopico k , podemos escribir la actividad A de esta última en la forma

$$A = \frac{N_k^{Ps}}{(N_k^{Ps})_P} A_P \quad (5)$$

Esta ecuación nos permite calcular de forma simple la actividad de una muestra problema a partir del número de cuentas N_k^{Ps} de uno de sus fotopicos, supuesto conocidos $(N_k^{Ps})_P$, para el mismo fotopico, y A_P de una muestra que tomamos como patrón.

5.2 Caso de varios fotopicos solapando correspondientes a fotones emitidos en la desexcitación de un mismo núcleo:

Cuando se utilizan detectores de INa(Tl), en el espectro gamma, la mayoría de los fotopicos correspondientes a la radiación natural solapan unos con otros y dificulta la determinación de las actividades de los emisores correspondientes. Sin embargo, hay casos en los que el solapamiento se debe, esencialmente, a fotones que proceden de la desexcitación del mismo elemento emisor. En estos casos, podemos tratar a este conjunto de fotopicos como si se tratase de un único fotopico que denominaremos *pseudofotopico*. Si consideramos uno de estos *pseudofotopicos* formado por dos fotopicos a y b , el número de cuentas netas de éste lo podemos escribir como

$$N_k^{Ps} = A(f_{\gamma_a} + f_{\gamma_b})\varepsilon_A^k \quad (6)$$

donde f_{γ_a} y f_{γ_b} representan las probabilidades de emisión de los fotones γ_a y γ_b por desintegración. ε_A^k sería una eficiencia intermedia entre la correspondiente a los dos fotones. Una aproximación razonable, sería tomar, por ejemplo, la media aritmética entre las dos. La ecuación anterior nos permite obtener la actividad A del núcleo considerado en la muestra analizada, como

$$A = \frac{N_k^{Ps}}{(f_{\gamma_a} + f_{\gamma_b})\varepsilon_A^k} \quad (7)$$

Lo mismo que para un fotopico simple, podemos escribir también

$$A = \frac{N_k^{Ps}}{(N_k^{Ps})_P} A_P \quad (8)$$

donde $(N_k^{Ps})_P$ representa aquí las cuentas netas del pseudofotopico correspondiente a la muestra patrón.

5.3 Caso de dos fotopicos solapando correspondientes a fotones emitidos en la desexcitación de dos núcleos diferentes

En este caso, el número de cuentas netas correspondientes al pseudofotopico se puede escribir como

$$N_k^{Ps} = (A_a f_{\gamma_a} + A_b f_{\gamma_b}) \varepsilon_A^k \quad (9)$$

y, en general, no podemos determinar las actividades de los dos núcleos independientemente. A continuación consideramos algunos casos particulares:

a) *Se conoce la actividad uno de los dos núcleos*

Si conocemos la actividad debida a uno de los dos núcleos, por ejemplo A_a , la ecuación anterior, junto con una ecuación similar para la muestra patrón, nos permite determinar A_b como

$$A_b = \frac{N_k^{Ps}}{(N_k^{Ps})_p} \left[(A_a)_p \frac{f_{\gamma_a}}{f_{\gamma_b}} + (A_b)_p \right] - A_a \frac{f_{\gamma_a}}{f_{\gamma_b}} \quad (10)$$

b) *Los dos núcleos pertenecen a la misma serie radiactiva y se suponen en equilibrio secular*

En este caso, el equilibrio secular impone $A_a = A_b$, con lo que, con la actividad de ambos núcleos $A \equiv A_a = A_b$ se puede obtener también de las expresiones (7) y (8), como en el caso de dos fotopicos, procedentes de la desexcitación de un mismo núcleo, solapando.

c) *Caso de dos pseudofotopicos dobles en los que, en cada uno de ellos, intervienen dos núcleos de diferente serie radiactiva, siendo identicos los núcleos en ambos pseudofotopicos.*

Si designamos por a y b a los núcleos cuya desintegración da lugar a los dos pseudofotopicos que designamos con k y k' , podremos escribir para el primero de ellos

$$N_k^{Ps} = (A_a f_{\gamma_a} + A_b f_{\gamma_b}) \varepsilon_A^k \quad (11)$$

De la misma forma, podremos escribir para este pseudofotopico de la muestra patrón una ecuación similar

$$(N_k^{Ps})_p = [(A_a)_p f_{\gamma_a} + (A_b)_p f_{\gamma_b}] \varepsilon_A^k \quad (12)$$

Dividiendo entre si las dos ecuaciones anteriores, tenemos

$$\frac{N_k^{Ps}}{(N_k^{Ps})_p} = \frac{A_a f_{\gamma_a} + A_b f_{\gamma_b}}{(A_a)_p f_{\gamma_a} + (A_b)_p f_{\gamma_b}} \quad (13)$$

donde suponemos conocidas las actividades $(A_a)_p$ y $(A_b)_p$.

Para el segundo pseudofotopico, que designamos con el índice k' , podemos escribir también una ecuación similar a la anterior

$$\frac{N_{k'}^{Ps}}{(N_{k'}^{Ps})_p} = \frac{A_a f_{\gamma'_a} + A_b f_{\gamma'_b}}{(A_a)_p f_{\gamma'_a} + (A_b)_p f_{\gamma'_b}} \quad (14)$$

En estas dos últimas ecuaciones, intervienen las mismas incógnitas A_a y A_b , con lo que pueden resolverse, en principio, para determinar A_a y A_b .

d) *Caso de dos pseudofotopicos dobles en los que, en cada uno de ellos, intervienen dos núcleos de diferente serie radiactiva, siendo diferentes los núcleos en ambos pseudofotopicos.*

El caso particular considerado en el apartado c) en el que en los dos pseudofotopicos intervengan los mismos núcleos que se desintegran no es muy frecuente. Sin embargo, si es frecuente que en los dos pseudofotopicos intervengan pares de núcleos diferentes, perteneciendo los dos núcleos de cada par a series diferentes. En este caso, si se supone que los dos miembros de una serie están en equilibrio secular, podemos utilizar el procedimiento expuesto en el apartado anterior ya que las actividades de los dos miembros diferentes de una serie son iguales. En este caso, A_a haría referencia a la actividad de los núcleos de una serie y A_b a la actividad de los núcleos de la otra.

5.4 Actividad mínima detectable (AMD)

Para determinar la actividad radiactiva de un determinado elemento en una muestra, puesta de manifiesto por la emisión de un rayo gamma característico de este elemento, no basta con medir el número de cuentas del fotopico correspondiente, si no que se ha de tener en cuenta también la contribución radiactiva debida al entorno o fondo ambiental donde se realiza la medida.

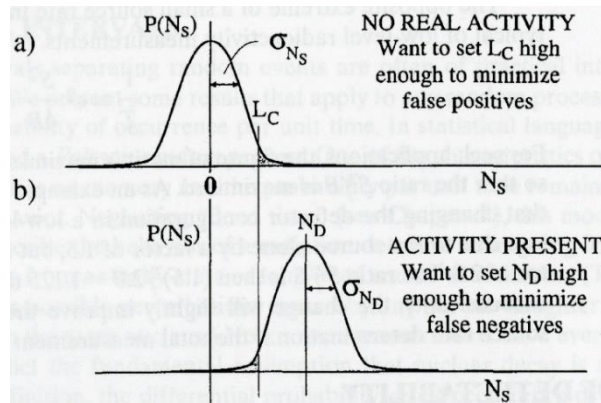


Figura 17: Distribución del número de cuentas netas N_s para los casos: (a) actividad real nula y (b) actividad real no nula.

Si se supone que una muestra no presenta actividad real, todos los fotones medidos deben provenir del fondo y el número de cuentas netas, N_s , debería ser nulo. Sin embargo, el 50% de las veces se encontrarán falsos positivos en la actividad de la muestra debido a las fluctuaciones estadísticas del fondo (el otro 50% de las veces se encontrará que la actividad de la muestra es inferior a la del fondo, i.e., el número de cuentas netas será negativo), como se muestra en la Figura 17 (a).

Para solventar este problema, L. A. Currie estableció un límite crítico L_c en el número de cuentas netas de la muestra, de modo que si tenemos una muestra sin actividad real, la probabilidad de medir un número de cuentas netas superior a L_c (falso positivo) sea suficientemente pequeña, típicamente inferior a 0.05, como se indica en la Figura 17 (a).

En el caso de que la muestra tenga actividad real, interesa determinar el valor medio de la distribución de probabilidad del número de cuentas netas (N_D) de modo que la probabilidad de medir un número de cuentas inferior a L_c (falso negativo) sea igualmente pequeño, típicamente también 0.05, como se indica en la Figura 17 (b)[10, 11].

Suponiendo que el tiempo de medida de la muestra y del fondo sean iguales, que las únicas fluctuaciones en el número de cuentas sean las estadísticas y que se trate de muestras con débil actividad radiactiva, como es nuestro caso, tenemos[11],

$$L_c = 1.645\sqrt{2}\sigma_{N_f}, \quad (15)$$

$$N_D = 1.645 \times \sqrt{2}\sigma_{N_f} + 2.706, \quad (16)$$

y

$$\sigma_{N_D} \cong \sqrt{2}\sigma_{N_f} + 1.645, \quad (17)$$

donde N_f representa el número de cuentas netas de un determinado fotopico debido al fondo y σ_{N_f} su error estadístico. Si suponemos que se trata de un fotopico aislado y despreciamos la contribución Compton de fotones de más energía, podemos escribir

$$\sigma_{N_f} \cong \sqrt{N_f}. \quad (18)$$

Ya que la contribución del fondo hay que restarlo en las medidas de todas las muestras para obtener las cuentas netas de estas, puede interesar medirlo con más precisión (menos incertidumbre) estadística que las medidas de las muestras, incrementando el tiempo de medida de éste. Así, si el tiempo de medida del fondo es T veces el tiempo de medida de la muestra y definimos

$$n_f = \frac{N_f}{T}, \quad (19)$$

obtenemos

$$L_C = 1.645\sqrt{1+T}\sigma_{n_f}, \quad (20)$$

$$N_D = 1.645 \times \sqrt{1+T}\sigma_{n_f} + 2.706 \quad (21)$$

y

$$\sigma_{N_D} \cong \sqrt{1+T}\sigma_{n_f} + 1.645, \quad (22)$$

donde

$$\sigma_{n_f} = \frac{\sigma_{N_f}}{T} = \sqrt{\frac{n_f}{T}}. \quad (23)$$

La AMD la calculamos a partir de la Ecuación (4), sustituyendo N_k^{Ps} por N_D , obtenido de la Ecuación (21), considerando el fotopico k para determinar σ_{n_f} ,

$$A_{AMD} = \frac{N_D}{f_Y \varepsilon_A^k t} \quad (24a)$$

o bien, a partir de la Ecuación (5), podemos escribir también

$$A_{AMD} = \frac{N_D}{(N_k^{Ps})_P} A_P \quad (25b)$$

5.5 Cálculo del número de cuentas netas de un fotopico

Hay diferentes procedimientos para medir el número de cuentas de un determinado fotopico. La elección del más adecuado puede depender del tipo de detector utilizado y del espectro de la muestra que se desea medir.

Detector de INa(Tl)

Con el fin de obtener el número de cuentas que provienen únicamente del fotopico cuya actividad se quiere calcular, se considerará primeramente un procedimiento que se denominará estándar (E) y luego consideraremos otro procedimiento alternativo que difiere algo de éste que se denominará estándar modificado (EM).

Procedimiento estándar

En la Figura 18 (a), se ha representado un fotopico aislado ideal de un espectro gamma, que podría corresponder a los fotones de mayor energía de una muestra. En este caso, el número de cuentas N_k^P del fotopico viene determinado simplemente por el área del fotopico “peak area”, definida como la suma de las cuentas acumuladas en todos los canales que lo forman, según se indica en la Figura 18 (a) .

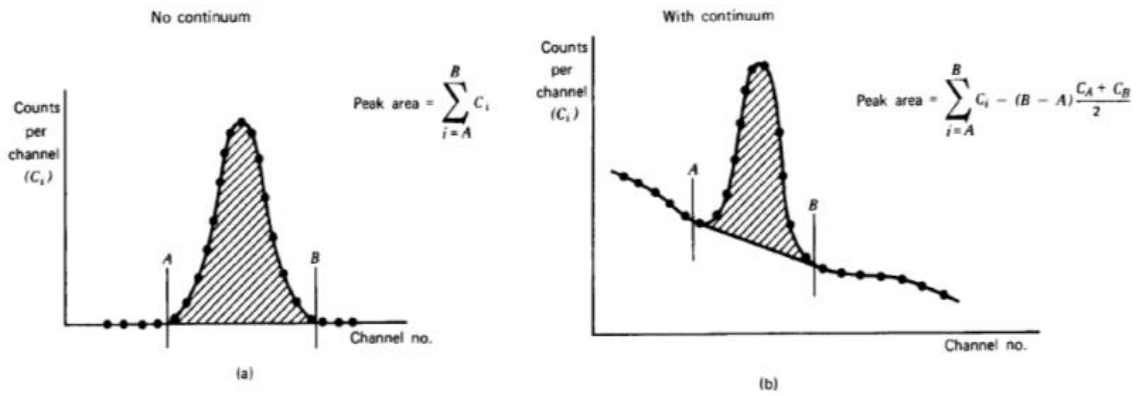


Figura 18. Determinación del área de un fotopico de un espectro gamma. En la parte (a) el continuo bajo el fotopico es despreciable, mientras que en la parte (b) no lo es.

Cuando se analizan muestras naturales, los fotopicos aparecen sobre las partes debidas al efecto Compton producidas por fotones de mayor energía. En la Figura 18 (b) se muestra un ejemplo de este caso. Ahora, para determinar N_k^P , hay que restar al número total de cuentas del fotopico N_k^{PC} la contribución debida al efecto Compton N_k^C de fotones más energéticos. El método más simple es el que se indica en la expresión “peak area” de la Figura 18 (b), en el que la parte continua del espectro se supone lineal entre los canales extremos A y B del fotopico. Así, tenemos

$$N_k^P = N_k^{PC} - N_k^C \quad (26)$$

N_k^P contiene, todavía, una contribución N_k^{Pf} debida al fondo ambiental procedente del lugar donde se realizan las medidas. N_k^{Pf} se obtiene de la misma manera que N_k^P pero con N_k^{PC} y N_k^C medidos sin muestra radiactiva en las cercanías del detector, por lo que ahora los designaremos como N_k^{PCf} y N_k^{Cf} , respectivamente. Entonces, la contribución N_k^{Ps} debida únicamente a la muestra, la obtenemos como

$$N_k^{Ps} = N_k^P - N_k^{Pf} \quad (27)$$

La actividad de la muestra que se deduce de la medida de N_k^{Ps} podemos obtenerla a partir de la Ecuación (3).

Procedimiento estándar modificado

En la Figura 18, se ha representado el espectro gamma de una fuente de ^{137}Cs utilizando un detector de INa(Tl) . El fotopico correspondiente al fotón de 661.6 keV se distingue claramente a la derecha, después de la parte final del espectro debido al efecto Compton. Entre esta parte y el fotopico aparece un mínimo de cuentas que no se anula en absoluto y es debido, esencialmente, a cuentas correspondientes al efecto Compton y al fotopico, debido a la escasa resolución del detector de INa(Tl) . Es claro que el procedimiento estándar para determinar el área del fotopico minusvalora este área. La figura sugiere un procedimiento mejor en el que se extrapola desde la derecha del fotopico el fondo hasta el punto mínimo del espectro entre final de la parte Compton y el fotopico y se resta al área total bajo el fotopico. En la Figura, este fondo tiene una pendiente pequeña casi constante, pero en la práctica en espectros naturales puede aparecer en esta región otros fotopicos. Por este motivo, determinamos el número de cuentas justo en la derecha del fotopico y restamos este número de cuentas de cada canal hacia la izquierda, hasta el punto mínimo del espectro, es decir:

$$\text{Area fotopico} = \sum_{i=A}^B C_i - \sum_{i=A}^B C_B \quad (28)$$

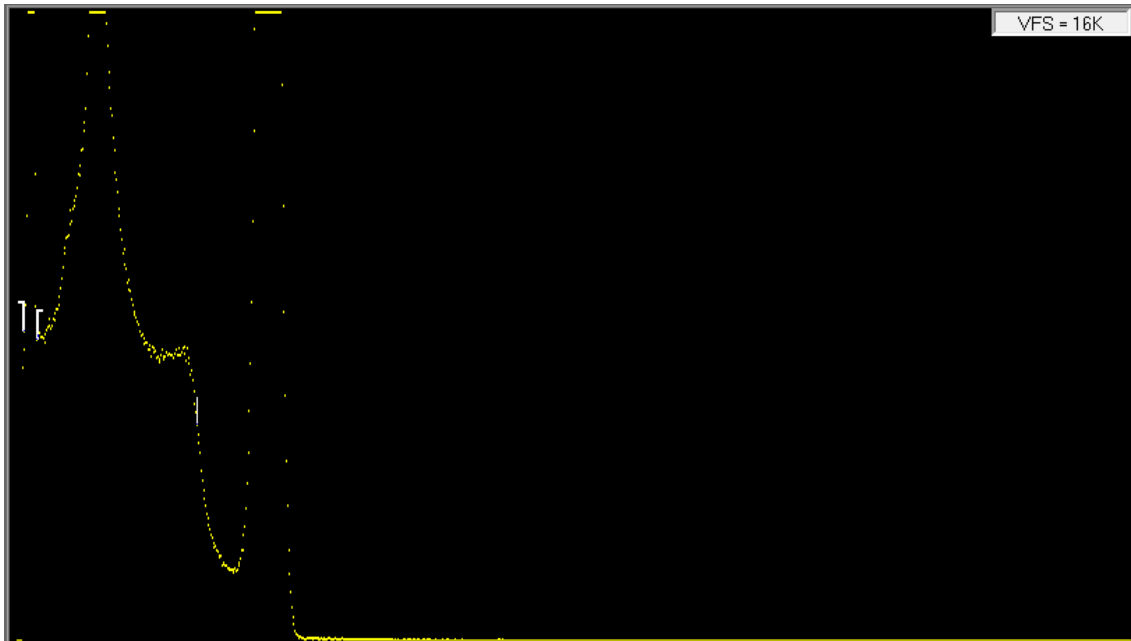


Figura 19. Ejemplo del espectro gamma de una fuente de ^{137}Cs medido con un detector de INa(Tl)

Detector de GeHP

Para el detector de GeHP sólo consideramos el procedimiento estándar anteriormente descrito, ya que la poca anchura de los picos nos permite despreciar el solapamiento de los fotopicos con las cuentas provenientes del efecto Compton.

5.6 Errores Asociados a la Determinación de la Actividad de la Muestra

En este apartado consideraremos únicamente errores de tipo estadístico, limitándonos en todos los casos a la desviación típica o desviación estándar. Suponemos que las desviaciones típicas asociadas a las medidas $N_k^P, N_k^C, N_k^{PC}, N_k^{Pf}, N_k^{Ps}$ son, respectivamente, $\sigma(N_k^P), \sigma(N_k^C), \sigma(N_k^{PC}), \sigma(N_k^{Pf}), \sigma(N_k^{Ps})$, con $\sigma(N_k^{PC}) = \sqrt{N_k^{PC}}$ y $\sigma(N_k^C) = \sqrt{N_k^C}$. Entonces, aplicando la ley de propagación de errores, tenemos

$$\sigma(N_k^P) = \sqrt{\sigma(N_k^{PC})^2 + \sigma(N_k^C)^2} \quad (29)$$

$$\sigma(N_k^{Pf}) = \sqrt{\sigma(N_k^{PCf})^2 + \sigma(N_k^{Cf})^2} \quad (30)$$

$$\sigma(N_k^{Ps}) = \sqrt{\sigma(N_k^P)^2 + \sigma(N_k^{Pf})^2} \quad (31)$$

Para calcular los errores de la actividad de las muestras y de las eficiencias de los detectores, también aplicamos propagación de errores a las ecuaciones (3) y (5) respectivamente. Entonces, tenemos:

$$\sigma(\epsilon_A^k) = \sqrt{\left(\frac{\partial \epsilon_A^k}{\partial N_k^{Ps}} \sigma(N_k^{Ps})\right)^2 + \left(\frac{\partial \epsilon_A^k}{\partial A_P} \sigma(A_P)\right)^2} \quad (32)$$

$$\sigma(A) = \sqrt{\left(\frac{\partial A}{\partial N_k^{Ps}} \sigma(N_k^{Ps})\right)^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial A_P} \sigma(A_P)\right)^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial ((N_k^{Ps})_P)} \sigma((N_k^{Ps})_P)\right)^2} \quad (33)$$

6. Resultados

6.1 Elección de fotopicos para el análisis de la actividad del ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K

Los criterios para elegir los fotopicos más adecuados para determinar la actividad de los elementos indicados son, fundamentalmente, que correspondan a fotones emitidos con una probabilidad suficiente y cuyo solapamiento con otros fotopicos próximos sea pequeño (al menos si proceden de diferentes núcleos emisores). Esta última condición se cumple fácilmente con detectores de germanio pero no con detectores de INa(Tl) .

Los fotopicos analizados con el detector de GeHP corresponden a las energías indicadas en la Tabla 3. La elección para el detector de INa(Tl) se discute más adelante.

La eficiencia absoluta ϵ del detector GeHP para las energías correspondientes a los fotones más relevantes emitidos por los distintos radionúclidos de las muestras analizadas obtenida a partir de la Ecuación (3) se muestra en la Tabla 3.

Radionúclido	Energía/keV	ϵ	
		GeHP	INa(Tl)
^{210}Pb	46.54	0.035 ± 0.005	
^{234}Th	63.3	0.042 ± 0.006	
^{212}Pb	238.6	0.015 ± 0.005	0.077 ± 0.030
^{214}Pb	295.5	0.0112 ± 0.0009	0.016 ± 0.005
^{228}Ac	338.3	0.009 ± 0.003	
^{214}Pb	351.9	0.0087 ± 0.0006	
^{208}Tl	510.8	0.006 ± 0.002	
^{208}Tl	583.2	0.005 ± 0.001	
^{214}Bi	609.3	0.0037 ± 0.0003	
^{228}Ac	911.2	0.0022 ± 0.0007	
^{40}K	1460.8	0.0013 ± 0.0007	0.041 ± 0.005

Tabla 3. Eficiencia del detector GeHP y de INa(Tl) , con su error correspondiente, para distintos valores de la energía asociados a emisiones gamma de los isótopos con actividad relevante en las muestras analizadas.

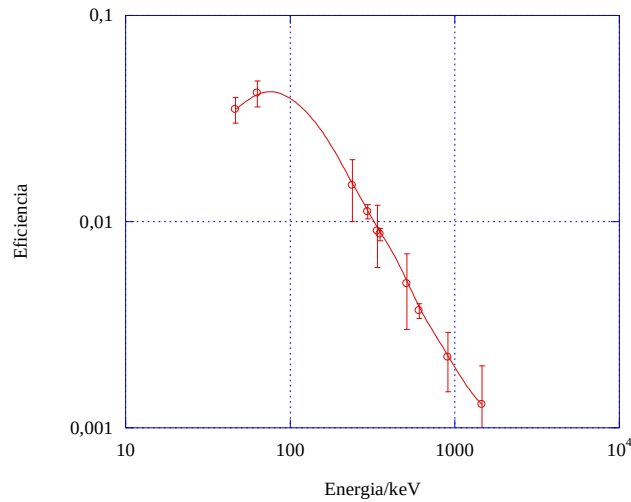


Figura 20. Eficiencia absoluta del detector de Germanio, con su error correspondiente, en función de la energía.

En la Figura 20 se ha representado la eficiencia absoluta ϵ del detector de germanio en función de la energía para las muestras con geometría cilíndrica utilizadas en el trabajo. La forma de la curva es cualitativamente similar a la dada por el fabricante para muestras puntuales. Presenta un máximo para energías entre 50 y 100 keV. Los valores de ϵ disminuyen rápidamente con la energía a partir de 100 keV, limitando la utilidad del detector a medida que la energía crece.

6.2 Actividad mínima detectable

La actividad mínima detectable **AMD**, calculada de acuerdo con las Ecuaciones (25a) o (25b), para los distintos radionúclidos con actividad relevante en las muestras analizadas se muestra en la Tabla 4. La AMD para las energías de 510.8 keV y 1460.8 keV procedentes de la desintegración del ^{208}Tl y ^{40}K , respectivamente, son considerablemente mayores que para el resto de las energías consideradas. En cuanto al fotopico de 510.8 keV, esto es debido a que el fondo radiactivo natural contribuye de forma importante a este fotopico a través de la radiación de 511 keV procedente de la aniquilación de pares electrón-positrón creados previamente por radiación gamma suficientemente energética. El valor elevado de la AMD para el fotopico de 1460.8 keV, se debe a la considerable concentración de ^{40}K en la naturaleza, en particular en los materiales de construcción. Un valor elevado de la AMD para un determinado isótopo exige una mayor concentración del mismo en la muestra de análisis para una medida precisa de la actividad del mismo.

Serie	Radionúclido	Energía/keV	AMD/Bq·Kg ⁻¹ GeHP INa(Tl)	
²³⁸ U	²¹⁰ Pb	46.54	7.4	
	²³⁴ Th	63.3	6.8	
	²¹⁴ Pb	295.2	2.8	1.73
	²¹⁴ Pb	351.9	3.4	
	²¹⁴ Bi	609.3	6.6	
²³² Th	²¹² Pb	238.6	1.3	0.65
	²²⁸ Ac	338.7	5.5	
	²⁰⁸ Tl	510.8	21.3	
	²⁰⁸ Tl	583.2	6.7	
	²²⁸ Ac	911.2	5.4	
⁴⁰ K	⁴⁰ K	1460.8	24.5	5.04

Tabla 4. Actividad mínima detectable por el detector de Germanio y por el detector de INa(Tl) para distintas energías con un nivel de confianza del 95%

6.3 Actividades del ²³⁸U, ²³²Th y ⁴⁰K

En la Tabla 5 se muestran los resultados de las actividades del ²³⁸U, ²³²Th y ⁴⁰K obtenidas con el detector GeHP y con el detector de INa(Tl) para distintas muestras de carbón y de sus cenizas. En el cálculo de estas actividades, hemos supuesto que se cumple el equilibrio secular entre los diferentes miembros de las cadenas del ²³⁸U y ²³²Th.

6.3.1 Determinación de la actividad del ²³⁸U con el detector de GeHP

Con el detector GeHP, la actividad del ²³⁸U en la Tabla 5 ha sido determinada a partir del fotopico asociado al fotón de 351.9 keV de energía, proveniente de la desintegración del ²¹⁴Pb, por ser el que presenta un error menor. También puede observarse que para los fotopicos de 46.54 keV, 63.3 keV y 609.3 keV de energía, provenientes de la desintegración del ²¹⁰Pb, ²³⁴Th y ²¹⁴Bi, respectivamente, las actividades encontradas son compatibles entre sí, en el supuesto de que exista equilibrio secular entre los emisores correspondientes.

6.3.2 Determinación de la actividad del ²³²Th con el detector de GeHP

Para determinar la actividad del ²³²Th con el detector GeHP, se ha considerado el fotopico de 238.6 keV de energía, proveniente de la desintegración ²¹²Pb, por

encontrarse en la zona de alta eficiencia del detector y ser emitido el fotón correspondiente con una alta probabilidad (43.6%), siendo así el fotopico que da lugar a un menor error. Esta actividad concuerda, dentro del intervalo de error, con las actividades obtenidas a partir de los fotopicos de 338.7 keV y 911.2 keV provenientes de la desintegración del ^{228}Ac y de los fotopicos de 510.8 keV y 583.1 keV provenientes de la desintegración ^{208}Tl , en el supuesto también de que exista equilibrio secular entre los emisores correspondientes.

Cabe señalar que la mayoría de las actividades encontradas para el ^{238}U y el ^{232}Th (véase Tabla 5 y Apéndice B) se encuentran claramente por encima de la AMD que vemos para cada radionúclido en la Tabla 4. Sin embargo, las actividades correspondientes al carbón colombiano son relativamente pequeñas, aunque son superiores a la AMD, y el error relativo en la determinación de las actividades es grande.

Actividad/Bq·Kg ⁻¹ : Detector GeHP Detector INa(Tl)			
Muestra	²³⁸ U	²³² Th	⁴⁰ K
Carbón C.T. Anllares	30.0 ± 1.8 24 ± 6	29.1 ± 1.2 30.7 ± 2.9	327 ± 32 336 ± 4
Cenizas C.T. Anllares	94.5 ± 2.9 72 ± 9	96.7 ± 2.1 93.5 ± 4.5	1006 ± 71 935 ± 9
Escorias C. T. Anllares	85.1 ± 2.8 70 ± 9	94.6 ± 2.0 97.7 ± 4.2	877 ± 65 818 ± 8
Carbón Colombiano C. T. Los Barrios	6.3 ± 1.0 8 ± 5	5.9 ± 0.7 13.1 ± 2.4	113 ± 17 119 ± 3
Carbón Sudafricano C. T. Los Barrios	24.0 ± 1.5 18 ± 6	23.6 ± 1.2 33.4 ± 2.7	26 ± 12 33.7 ± 1.5
Carbón Colombiano 40% Sudafricano 60% C. T. Los Barrios	19.8 ± 1.5 13 ± 6	16.4 ± 1.0 21.3 ± 2.5	90 ± 15 97 ± 3
Cenizas Colombiano 40% Sudafricano 60% C. T. Los Barrios	134.1 ± 3.4 91 ± 10	134.8 ± 2.4 138.3 ± 4.5	343 ± 33 373 ± 5
Carbón Pozo Aller	31.9 ± 1.8 28 ± 10	37.7 ± 1.4 35.9 ± 3.0	413 ± 40 456 ± 4
Carbón Pozo Candín (1) Hunosa	35.3 ± 1.9 29 ± 10	39.6 ± 1.4 43.7 ± 3.1	552 ± 46 591 ± 5
Carbón Pozo Belmonte	17.8 ± 1.3 12 ± 8	9.0 ± 0.9 19.1 ± 2.4	109 ± 17 110.5 ± 1.7
Carbón Pozo Candín (2) Hunosa	24.3 ± 1.6 18 ± 6	33.6 ± 1.3 35.8 ± 2.9	381 ± 35 387 ± 5
Carbón quemado Pozo Candín (2) Hunosa	20.5 ± 1.5 12 ± 6	25.0 ± 1.1 32.3 ± 2.8	241 ± 27 288 ± 4

Tabla 5. Actividades con su error del ²³⁸U, ²³²Th y ⁴⁰K en Bq/kg para las distintas muestras de carbón y cenizas obtenidas con los detectores de GeHP y de INa(Tl)

6.3.3 Determinación de la actividad del ^{238}U con el detector de INa(Tl)

Como se ha dicho, en los espectros gamma realizados con el detector de INa(Tl), la baja resolución del detector hace que algunos fotopicos se solapen, como se ilustra en la Figura 21. En este caso, la actividad del ^{238}U ha sido determinada de varias formas. En una de ellas, la más directa, se ha utilizado el fotopico asociado al fotón de 295.2 keV de energía, proveniente de la desintegración del ^{214}Pb , por ser un fotopico con escasa contribución de fotones procedentes de otros radionúclidos y una probabilidad de emisión del 18.4%. La contribución espuria más relevante se debe al fotón de 270.2 keV procedente de la desintegración del ^{228}Ac , de la cadena del ^{232}Th , con una probabilidad de emisión del 3.46%. (esto se puede comprobar valiéndose del espectro de alta resolución del detector de germanio)

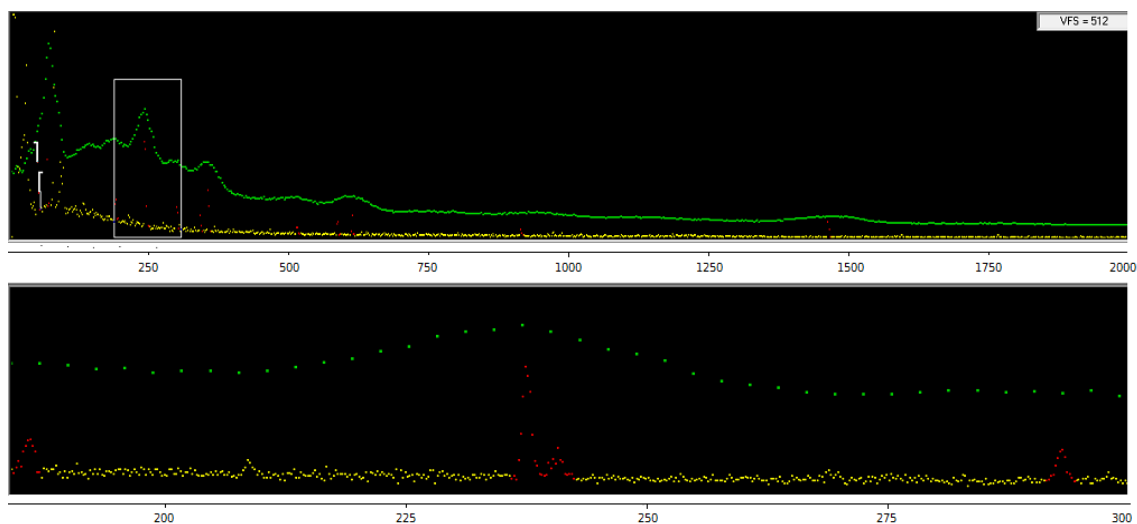


Figura 21. Ejemplo de una región del espectro de energías (en keV) de la muestra de carbón de Anllares medida con los dos detectores. En verde corresponde al detector de INa(Tl) y el amarillo al detector de GeHP

Una segunda forma de calcular la actividad del ^{238}U ha sido utilizando el método expuesto en la subsección 5.3, apartado a) a partir del pseudofotopico en el que intervienen los fotones de 351.9 keV (procedente de la desintegración del ^{214}Pb de la serie del ^{238}U , con una probabilidad del 35.6%) y 338.3 keV (procedente de la desintegración del ^{228}Ac de la serie del ^{232}Th , con una probabilidad del 11.3%). Primeramente, calculamos la contribución de este último (según se explica posteriormente) y luego la substraemos de la contribución total al pseudofotopico. Los resultados correspondientes se muestran en la Tabla 5.

La actividad del ^{238}U ha sido calculada también, usando el método anterior pero a partir del pseudofotopico formado por los fotones de 609.3 keV (procedente de la desintegración del ^{214}Bi de la serie del ^{238}U , con una probabilidad del 45.5%) y 583.2 keV (procedente de la desintegración del ^{208}Tl de la serie del ^{232}Th , con una

probabilidad del 85.0×0.359 %). Los resultados correspondientes se dan en las tablas del apéndice B.

6.3.4 Determinación de la actividad del ^{232}Th con el detector de INa(Tl)

Para determinar la actividad del ^{232}Th hemos utilizado también varios procedimientos. En el primero de ellos, hemos considerado el pseudofotopico formado por los fotones de energías 911.2 (25.8%), 964.8 (5.0%) y 969.0 (15.8), (procedente de la desintegración del ^{228}Ac de la serie del ^{232}Th), como se explica en la subsección 5.2. Los resultados se muestran en la Tabla 5.

En el segundo procedimiento, hemos utilizado el fotopico de 238.6 keV (procedente de la desintegración del ^{212}Pb de la serie del ^{232}Th , con una probabilidad del 43.6 %). Este fotopico tiene una contaminación del fotón de 241 keV (procedente de la desintegración del ^{224}Ra de la serie del ^{232}Th , con una probabilidad del 3.97%) y del fotón de 242.0 (procedente de la desintegración del ^{214}Pb de la serie del ^{238}U , con una probabilidad del 7.3%). Los resultados se muestran en las tablas del Apéndice B. En este caso, las contribuciones espurias no se han sustraído.

Aprovechando la eficiencia del detector de INa(Tl) para energías relativamente altas, hemos calculado también la actividad del ^{232}Th a partir del fotopico de 2614.3 keV (procedente de la desintegración del ^{208}Tl de la serie del ^{232}Th , con una probabilidad del $99.8 \times 0.359\%$). Este fotopico se puede considerar prácticamente sin contaminación, con lo que el cálculo de la actividad es simple. Los resultados se muestran también en las tablas del Apéndice B.

Los resultados mostrados en la Tabla 5, muestran un acuerdo razonable entre las actividades de los diferentes isótopos obtenidos con los detectores de GeHP y INa(Tl).

Por último veamos en la Tabla 6 la concentración de materiales radiactivos en las cenizas del carbón.

Muestra	Concentraciones isotópicas cenizas/carbón		
	^{238}U	^{232}Th	^{40}K
C. T. Anllares	3.15 ± 0.02	3.32 ± 0.01	3.08 ± 0.04
C.T. Los Barrios Colombiano 40% Sudafricano 60%	6.77 ± 0.01	8.22 ± 0.01	3.81 ± 0.05
Hunosa: pozo Candín(2)	0.84 ± 0.12	0.69 ± 0.08	0.63 ± 0.22

Tabla 6: *Aumento de la concentración de elementos radiactivos cenizas/carbón en las diferentes muestras*

7. Conclusiones

El objetivo principal de este trabajo era determinar las concentraciones de ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K en diferentes muestras de carbón así como en sus cenizas, con el fin de analizar los posibles cambios en la concentración de estos elementos (o de sus descendientes) en estas últimas respecto al carbón original, como sugiere los datos recogidos en la Tabla 2.

Nuestros resultados indican que la concentración de los elementos radiactivos en las cenizas de carbón aumenta en el caso de carbón quemado en centrales térmicas pero de forma desigual. En la central térmica de los Barrios (Algeciras) el aumento en la concentración del ^{238}U es del orden de un factor 10 (de acuerdo con los datos de la Tabla 2). Para el ^{232}Th el factor se reduce hasta 8 (mayor que los datos de la Tabla 2) y para ^{40}K hasta 4 (de acuerdo con los datos de la Tabla 2), aproximadamente. Para la central Térmica de Anllares, el aumento se reduce a un factor próximo a 3 para los tres elementos radiactivos naturales considerados. Este resultado sugiere diferencias esenciales en el proceso de quemado o de retención de los productos resultantes en ambas centrales.

Para el carbón quemado por procedimientos “normales” en una estufa, la actividad de los tres elementos radiactivos naturales considerados parece disminuir significativamente, al contrario de lo que ocurre con el carbón de las dos centrales térmica consideradas. Esto sugiere que la ausencia de elementos de retención de los productos del incinerado facilita el escape de elementos radiactivos con los humos generados en la combustión.

Las diferencias encontradas en el aumento de la concentración de elementos radiactivos naturales en el proceso de quemado del carbón suscita la curiosidad de entender a qué se deben estas diferencias. Parece claro que las centrales térmicas poseen algún sistema de retención de cenizas volantes que resulta efectivo para evitar el escape del ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K , aunque en diferente proporción de unas a otras.

Otro objetivo de este trabajo era comprobar en qué medida el detector de INa(Tl) era útil para determinar las actividades de los elementos radiactivos naturales de ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K , ya que el uso del detector de GeHP requiere nitrógeno líquido que es bastante caro. Los resultados indicados en la Tabla 5, muestran un buen acuerdo de las actividades de estos elementos obtenidos con los detectores de GeHP y INa(Tl) , si bien se debe tener en cuenta que los resultados obtenidos con el detector de GeHP nos han permitido observar el solapamiento de los diferentes fotopicos encontrados con el detector de INa(Tl) e identificar así, qué fotopicos estaban lo suficientemente aislados para medir la actividad de un determinado elemento.

Para la determinación de la actividad radiactiva de los elementos analizados, es necesario conocer sus probabilidades de emisión gamma relevantes por desintegración.

En el presente trabajo se han revisado y puesto al día dichas probabilidades de acuerdo con los datos publicados en la revista Nuclear Data Sheets[12].

8. Apéndice A

Serie del ^{238}U

Tabla A1 Serie radiactiva (descendientes) del ^{238}U , con datos en rojo actualizados según las Tablas “Nuclear Data Sheets”.

Núcleo	$T_{1/2}$	Energías de las radiaciones más probables e intensidades referidas al núcleo padre o abuelo (multiplicando por el coeficiente en verde, si procede)*		
		α (KeV)	β (KeV)	γ (KeV)
^{238}U	$4.468 \times 10^9 \text{y}$	4151 (21%) 4198 (79%)	-	49.55 (0.06%) + CI
^{234}Th	24.1d	-	106 (6%)*, 107 (14%)* 199 (78%)*	63.29 (3.7%) 92.4, 92.8 (2.1, 2.1%)
$^{234}\text{Pa}^*$	1.16m	-	2269 (97.6%)	766 (0.32%) 1001 (0.84%)
^{234}Pa	6.7h	-	530 (0.16×0.66%)* 1130 (0.16×0.13%)*	100 (0.16×0.50%) 700 (0.16×0.24%) 900 (0.16×0.70%)
^{234}U	$2.46 \times 10^5 \text{y}$	4722* (28.4%) 4774 (71.4%)	-	532 (0.12%)
^{230}Th	$7.54 \times 10^4 \text{y}$	4620* (23.4%) 4687 (76.3%)	-	67.7 (0.38%) 144 (0.05%)
^{226}Ra	1600y	4601* (6.2%) 4784 (93.8%)	-	186.2 (3.64%)
^{222}Rn	3.8235d	5489.5 (99.9%)	-	510 (0.076%)
^{218}Po	3.098m	6002 (~100%)	330 (0.02%)	-
^{218}Po	26.8m	-	667 (45.9%), 724 (40.2%) 1019 (11%)	295.2 (18.4%) 351.9 (35.6%)
^{218}At	2s	6653 (0.02×0.64%) 6693 (0.02×0.89%)	-	-
^{218}Bi	19.9m	Q: 5.61 (0.02%)	1505 (17.0%)* 1540 (17.6%)* 3270 (19.1%)	609.3 (45.5%) 1120.3 (14.9%) 1764.5 (15.3%)
^{218}Po	164.3 μs	7687 (0.02%)	-	-
^{218}Tl	1.30m	-	1860 (0.02×24%)* 4210 (0.02×30%)* 4386 (0.02×20%)*	296 (0.02×79%) 799.6 (0.02×99%) 1316 (0.02×21%)
^{210}Po	22.2y	-	17.0 (84%) 63.5 (16%)	46.54 (4.25%)
^{210}Bi	5.01d	-	1162 (100%)	-
^{210}Po	138.4d	5304 (100%)	-	803 (0.001%)
^{206}Tl	4.202m	-	-	-
^{206}Pb	Stable	-	-	-

* Intensidades referidas a cien desintegraciones del núcleo padre o abuelo (multiplicando por la cantidad en verde, si el núcleo padre tiene varios hijos) no al ^{238}U . Si hay equilibrio secular, las probabilidades (una vez tenidos en cuenta los coeficientes en verde) pueden referirse, aproximadamente, al ^{238}U .

Comentarios:

El ^{238}U , primer elemento de la serie que lleva su nombre, se desintegra a ^{234}Th mediante emisión α (100%) al estado fundamental (ef) y a un estado excitado (ee) de 49.55 keV, que indicamos con un asterisco (*) en la Tabla A1. El ee se desexcita, fundamentalmente, por *conversión interna* (CI), como se indica también en la Tabla 2.1, de modo que la probabilidad de emisión de un rayo gamma de $E_\gamma = 49.55$ keV es sólo del 0.064% (ver diagramas de desintegración de la Serie ^{238}U : Figura ***), lo que limita la posibilidad de determinar la concentración de ^{238}U en una muestra de forma directa.

El ^{234}Th se desintegra en ^{234}Pa mediante emisión β^- (100%) a tres estados excitados, fundamentalmente. De estos, los dos estados más excitados se desexcitan directa o indirectamente al estado de menor energía (73.92 keV) emitiendo, esencialmente, fotones de energías 63.29, 92.38 y 92.8 MeV, como se indica en la Tabla A1. Las probabilidades de las dos últimas son muy parecidas.

El $^{234}\text{Pa}^*$ en el ee de 73.92 keV, se desintegra en un 99,84% de las veces en ^{234}U (97.6 % de ellas al ef, emitiendo β^- de 2269 keV de energía máxima), mientras que el resto de las veces se desexcita primero a través de un proceso de CI al ef del ^{234}Pa , para desintegrarse después también en ^{234}U mediante emisión β^- . Conviene notar que la energía de 2269 keV de las partículas β^- , es mayor que el calor de reacción correspondiente, $Q=2195$ keV, que figura en las Tablas, porque éste se calcula, normalmente, considerando transiciones de un ef a un ef.

El ^{234}U sufre sucesivas desintegraciones α dando lugar a ^{230}Th , ^{226}Ra , ^{222}Rn y ^{218}Po en el ef, más frecuentemente, o estados excitados. El ^{222}Rn es un gas que tiende a escapar difundándose del lugar donde se produce, por lo que se puede romper el equilibrio secular. Sin embargo, puesto que su periodo es de unos 3.82 días, el equilibrio secular se puede restablecer fácilmente evitando el escape, prácticamente, en unas tres semanas. Después de una desintegración α , el núcleo hijo queda, con frecuencia, en un estado excitado (indicado con un * en la columna de las α) que se desexcita emitiendo fotones. Las energías de los fotones más relevantes de cada transición y sus probabilidades por 100 desintegraciones del núcleo padre se indican en la Tabla A1, en las dos últimas columnas.

El ^{218}Po se desintegra en un 99.98% por emisión α en ^{214}Pb (ef) y este último se desintegra en ^{214}Bi por emisión β^- .

El ^{214}Bi se desintegra siguiendo un camino semejante al del ^{218}Po , hasta alcanzar ^{210}Pb . Este último se desintegra por emisión β^- en ^{210}Bi , quién, a su vez, sigue un caminos paralelos al ^{218}Po y ^{214}Bi , para alcanzar el ^{206}Pb que es estable.

Serie ^{235}U

La abundancia relativa del isótopo de ^{235}U en la naturaleza es solo del 0.07204%, mientras que la del ^{238}U es del 99.2742%. El ^{235}U se desintegra en ^{231}Th por emisión α . Un 55% de las veces, el ^{231}Th queda en un estado excitado de 205.3 keV, desexcitándose después a un estado de 185.7 keV. Finalmente, el ^{231}Th se desexcita emitiendo fotones de 185.7 keV con una frecuencia del 57.0% de desintegraciones del ^{235}U . Por otra parte, el ^{238}U , al desintegrarse, emite fotones de 186.2 keV (una energía muy próxima a 185.7 keV), con una frecuencia del 3.6%. Ya que el isótopo de ^{238}U es mucho más abundante que el de ^{235}U , la emisión del fotón del 185.7 keV del ^{235}U queda “enmascarada” por los fotones de 186.2 keV del ^{238}U y no se observa en muestras naturales.

Serie del ^{232}Th

Tabla A2* Serie radiactiva (descendientes) del ^{232}Th , con datos en rojo actualizados según las Tablas “Nuclear Data Sheets”.

Núcleo	$T_{1/2}$	Energías de las radiaciones más probables e intensidades referidas al núcleo padre o abuelo (multiplicando por el coeficiente en verde, si procede)*		
		α	β	γ
^{232}Th	14.05x10 ⁹ y	3947 (21.7%)* 4012 (78.2%)	-	-
↓				
^{228}Ra	5.75y	-	12.8 (30%)* 25.7 (20%)* 39.2 (40%)* 39.6 (10%)*	-
↓				
^{228}Ac	6.15h	-	1158 (29.9%)* 1731 (11%)*...	338.3 (11.3%) 911.2 (25.8%) 964.8 (5.0%) 969.0 (15.8%)
↓				
^{228}Th	1.912y	5340 (27.2%)* 5423 (72.2%)	-	84.4 (1.2%) 216.0 (0.25%)
↓				
^{228}Ra	3.66d	5449 (5.1%)* 5685 (94.9%)	-	241.0 (4.1%)
↓				
^{220}Rn	55.6s	6288 (~99.9%)	-	549.7 (0.1%)
↓				
^{216}Po	0.145s	6778 (100%)	-	-
↓				
^{212}Po	10.64h	-	154.6 (5.1%)* 331.3 (83%)* 569.9 (11.9%), ...	238.6 (43.6%) 300.1 (3.3%)
↓				
^{212}Bi	60.55m	6051 (25%)* 6090 (9.75%)	1525 (4.5%)* 2252 (55.4%)*...	39.9 (1.1%) 727.3 (6.6%) 1620.5 (1.8%)
↙ 64.1% ↘ 35.9%				
^{212}Po	299ns	8785 (0.641x100%)	-	-
↓				
^{208}Tl	3.05m	-	291 (0.359x24%)* 1524 (0.359x22%)* 1801 (0.359x49%)* ...	510.8 (0.359x21.6%) 583.2 (0.359x85.0%) 860.6 (0.359x12.5%) 2614.5 (0.359x99.8%)
↓				
^{208}Pb	Stable	-	-	-

*Intensidades referidas a cien desintegraciones del núcleo padre o abuelo (multiplicando por la cantidad en verde, si el núcleo padre tiene varios hijos) no al ^{232}Th . Si hay equilibrio secular, las probabilidades (una vez tenidos en cuenta los coeficientes en verde) pueden referirse, aproximadamente, al ^{232}Th .

Comentarios respecto de la serie del ^{232}Th

En relación con la serie del ^{232}Th , podemos hacer algunos comentarios semejantes a los hechos en relación con la serie del ^{238}U . El ^{232}Th se desintegra en ^{228}Ra a través de emisiones α . Aunque un 21.7% de las veces lo hace a un estado excitado de 63.8 keV (se indica con un asterisco-superíndice en la columna correspondiente a la emisión α), el ^{228}Ra se desexcita a través de un proceso de CI, fundamentalmente, por lo que solo

emite fotones de 63.8 keV con una probabilidad del 0.26%, que resulta demasiado pequeña para poder determinar la concentración de ^{232}Th en muestras naturales mediante espectrometría gamma.

El ^{228}Ra se desintegra en ^{228}Ac a través de emisiones β^- y aunque un 90% de las veces éste queda en un estado excitado (nótese el superíndice $*$ en todas las emisiones β^- consideradas), las vías dominantes de desexcitación del $^{228}\text{Ac}^*$ son también procesos de CI, por lo que los fotones emitidos son escasos para determinar la concentración del ^{228}Ac a través de la detección de estos.

El ^{228}Ac se desintegra en ^{228}Th también mediante emisión β^- , emitiéndose ahora fotones de energías 338.3, 911.2 y 969.0 keV con probabilidades 11.3%, 25.8% y 15.8%, relevantes para su detección (véase Tabla A2).

La desintegración del ^{228}Th se continua hasta el ^{212}Pb mediante emisiones α , pero los fotones emitidos tienen una probabilidad que no supera el 4%, por lo que no se suelen usar para determinar la concentración de los isótopos involucrados en los procesos de desintegración. Conviene tener en cuenta que uno de los isótopos que aparecen en la cadena de desintegración es el ^{220}Rn , que al igual que el isótopo ^{222}Rn es un gas y puede escapar de la muestra de análisis si está abierta. Como el $T_{1/2}(^{220}\text{Rn})$ es relativamente pequeño, de unos 55.6 s, la probabilidad de escape es menor que la del ^{222}Rn de la serie del ^{238}U .

El ^{212}Pb se desintegra en ^{212}Bi mediante emisiones β^- . La desexcitación posterior del ^{212}Bi da lugar a la emisión de fotones de 238.6 keV con una probabilidad del 43.6%, relevante para la detección (véase Tabla A2).

El ^{212}Bi se puede desintegrar a través emisiones α (35.94%) en ^{208}Tl o β^- (64.06%) en ^{212}Po con la subsiguiente emisión de fotones de 39.9 keV (1.1%), en el primer caso, y de 727.3 keV (6.6%) y 1620.5 keV (1.8%) en el segundo. Ya que las probabilidades de emisión no son muy grandes, estos fotones no se suelen tomar en consideración para la determinación de la concentración de ^{212}Bi . La desintegración del ^{212}Po en ^{208}Pb (estable) no da lugar a fotones, sin embargo, la desintegración del ^{208}Tl en ^{208}Pb , da lugar a fotones con energías 510.8, 583.2 y 2614.5 keV, con probabilidades relevantes de 22.6%, 85.0% and 99.8%, respecto al ^{208}Tl . Para obtener la concentración de ^{212}Bi a partir de la de ^{208}Tl , hay que tener en cuenta que la probabilidad de formación del ^{208}Tl es un factor 0.359 menor que la del ^{212}Bi .

Comentarios sobre el ^{40}K

El ^{40}K es un núcleo con $N=21$ y $Z=19$ impares, lo que le hace menos estable que sus vecinos ^{40}Ar ($Z=18$) ^{40}Ca ($Z=20$), por lo que puede desintegrarse a ^{40}Ar mediante captura electrónica (EC), en un 10.72%, o al ^{40}Ca por emisión β^- , en un 89.28%. En el primer caso, la desintegración deja el ^{40}Ar , casi siempre, en un estado excitado y al desexcitarse emite un fotón de unos 1460.8 keV, con una frecuencia del 10.66% de las desintegraciones del ^{40}K .

9. Apéndice B

CARBÓN ANLLARES			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	27.3 ± 4.6	
	²³⁴ Th (63.3)	32.2 ± 5.1	
	²¹⁴ Pb (295.2)	31.9 ± 2.4	25 ± 7
	²¹⁴ Pb (351.9)	30.0 ± 1.8	24 ± 6*
	²¹⁴ Bi (609.3)	34.2 ± 2.5	27 ± 10*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	29.1 ± 1.2	27.7 ± 1.0
	²²⁸ Ac (338.3)	35.5 ± 3.9	
	²²⁸ Ac (911.2)	30.1 ± 4.5	30.7 ± 2.9**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	27.0 ± 10.3	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	29.8 ± 5.7	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		37.7 ± 1.8
	⁴⁰ K (1460.8)	327.0 ± 31.8	336 ± 4

Tabla B1. Resultados obtenidos para la muestra de carbón Anllares

CENIZAS ANLLARES			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	104.3 ± 7.1	
	²³⁴ Th (63.3)	96.9 ± 7.5	
	²¹⁴ Pb (295.2)	96.2 ± 3.7	104 ± 10
	²¹⁴ Pb (351.9)	94.5 ± 2.9	72 ± 9*
	²¹⁴ Bi (609.3)	92.3 ± 3.9	98 ± 14*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	96.7 ± 2.1	99.6 ± 1.2
	²²⁸ Ac (338.7)	92.8 ± 6.0	
	²²⁸ Ac (911.2)	102.6 ± 7.2	93.5 ± 4.5**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	88.3 ± 13.1	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	97.8 ± 9.2	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		93.4 ± 2.3
⁴⁰ K	⁴⁰ K (1460.8)	1006.3 ± 71.2	935 ± 9

Tabla B2. Resultados obtenidos para la muestra de cenizas Anllares

ESCORIAS ANLLARES			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	39.2 ± 5.8	
	²³⁴ Th (63.3)	88.6 ± 7.1	
	²¹⁴ Pb (295.2)	86.3 ± 3.7	98 ± 10
	²¹⁴ Pb (351.9)	85.1 ± 2.8	70 ± 9*
	²¹⁴ Bi (609.3)	83.2 ± 3.7	84 ± 14*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	94.6 ± 2.0	96.8 ± 1.2
	²²⁸ Ac (338.7)	94.9 ± 6.3	
	²²⁸ Ac (911.2)	96.2 ± 7.1	97.7 ± 4.2**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	102.1 ± 13.1	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	97.3 ± 9.2	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		103.2 ± 2.1
⁴⁰ K	⁴⁰ K (1460.8)	876.7 ± 65.2	818 ± 8

Tabla B3. Resultados obtenidos para la muestra de escorias Anllares

CARBÓN COLOMBIANO			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	3.6 ± 3.6	
	²³⁴ Th (63.3)	6.8 ± 3.4	
	²¹⁴ Pb (295.2)	8.2 ± 1.5	19 ± 6
	²¹⁴ Pb (351.9)	6.3 ± 1.0	8 ± 5*
	²¹⁴ Bi (609.3)	9.9 ± 1.4	6 ± 8*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	5.9 ± 0.7	10.4 ± 1.0
	²²⁸ Ac (338.7)	No hay pico*	
	²²⁸ Ac (911.2)	5.3 ± 2.6*	13.1 ± 2.4**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	9.6 ± 9.4	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	10.9 ± 3.6	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		16.6 ± 1.4
⁴⁰ K	⁴⁰ K (1460.8)	112.6 ± 17.1	119 ± 3

Tabla B4. Resultados obtenidos para la muestra de carbón colombiano

CARBÓN SUDAFRICANO			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	23.3 ± 4.4	
	²³⁴ Th (63.3)	31.3 ± 4.6	
	²¹⁴ Pb (295.2)	21.3 ± 2.2	28 ± 7
	²¹⁴ Pb (351.9)	24.0 ± 1.5	18 ± 6*
	²¹⁴ Bi (609.3)	23.6 ± 2.0	20 ± 9*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	23.6 ± 1.2	28.6 ± 1.0
	²²⁸ Ac (338.7)	31.5 ± 3.5	
	²²⁸ Ac (911.2)	33.3 ± 4.2	33.4 ± 2.7**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	42.1 ± 10.3	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	31.7 ± 4.9	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		23.4 ± 1.6
⁴⁰ K	⁴⁰ K (1460.8)	26.2 ± 11.9	33.7 ± 1.5

Tabla B5. Resultados obtenidos para la muestra de carbón sudafricano

MEZCLA CARBÓN SUD. COL.			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	18.4 ± 4.1	
	²³⁴ Th (63.3)	13.0 ± 3.9	
	²¹⁴ Pb (295.2)	20.3 ± 2.0	25 ± 6
	²¹⁴ Pb (351.9)	19.8 ± 1.5	13 ± 6*
	²¹⁴ Bi (609.3)	15.5 ± 2.0	22 ± 9*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	16.4 ± 1.0	20.4 ± 1.0
	²²⁸ Ac (338.7)	17.9 ± 3.1	
	²²⁸ Ac (911.2)	22.4 ± 3.9	21.3 ± 2.5**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	23.4 ± 9.7	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	25.0 ± 4.8	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		16.2 ± 1.6
⁴⁰ K	⁴⁰ K (1460.8)	90.1 ± 15.4	97 ± 3

Tabla B6. Resultados obtenidos para la muestra con mezcla de carbón sudafricano y colombiano en una proporción de 60% y 40% respectivamente

MEZCLA CENIZAS SUD. COL.			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	151.4 ± 7.5	
	²³⁴ Th (63.3)	146.0 ± 8.5	
	²¹⁴ Pb (295.2)	135.4 ± 4.5	126 ± 11
	²¹⁴ Pb (351.9)	134.1 ± 3.4	91 ± 10*
	²¹⁴ Bi (609.3)	127.2 ± 4.4	106 ± 16*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	134.8 ± 2.4	130.1 ± 1.4
	²²⁸ Ac (338.7)	135.4 ± 6.8	
	²²⁸ Ac (911.2)	148.6 ± 8.4	138.3 ± 4.5**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	132.2 ± 15.1	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	137.1 ± 10.9	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		112.0 ± 2.5
⁴⁰ K	⁴⁰ K (1460.8)	342.5 ± 32.8	373 ± 5

Tabla B7. Resultados obtenidos para la muestra con mezcla de cenizas de carbón sudafricano y colombiano en una proporción de 60% y 40%

ALLER			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	30.7 ± 5.0	
	²³⁴ Th (63.3)	36.5 ± 5.0	
	²¹⁴ Pb (295.2)	33.5 ± 2.6	40 ± 8
	²¹⁴ Pb (351.9)	31.9 ± 1.8	28 ± 10*
	²¹⁴ Bi (609.3)	33.5 ± 2.4	40 ± 14*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	37.7 ± 1.4	38.8 ± 1.4
	²²⁸ Ac (338.7)	36.5 ± 4.4	
	²²⁸ Ac (911.2)	32.9 ± 4.4	35.9 ± 3.0**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	32.4 ± 10.1	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	39.3 ± 6.4	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		40.7 ± 3.0
⁴⁰ K	⁴⁰ K (1460.8)	413.4 ± 39.4	456 ± 4

Tabla B8. Resultados obtenidos para la muestra de carbón Aller

CANDÍN			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	59.5 ± 5.4	
	²³⁴ Th (63.3)	52.1 ± 5.6	
	²¹⁴ Pb (295.2)	36.6 ± 2.7	50 ± 8
	²¹⁴ Pb (351.9)	35.3 ± 1.9	29 ± 10*
	²¹⁴ Bi (609.3)	41.1 ± 2.5	45 ± 16*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	39.6 ± 1.4	42.0 ± 1.5
	²²⁸ Ac (338.7)	44.2 ± 4.5	
	²²⁸ Ac (911.2)	44.5 ± 4.7	43.7 ± 3.1**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	31.2 ± 10.2	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	41.9 ± 6.3	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		48.6 ± 3.1
⁴⁰ K	⁴⁰ K (1460.8)	551.7 ± 46.2	591 ± 5

Tabla B9. Resultados obtenidos para la muestra de carbón Candín

BELMONTE			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	19.6 ± 4.1	
	²³⁴ Th (63.3)	19.8 ± 4.0	
	²¹⁴ Pb (295.2)	18.4 ± 2.0	30 ± 6
	²¹⁴ Pb (351.9)	17.8 ± 1.3	12 ± 8*
	²¹⁴ Bi (609.3)	17.8 ± 1.8	11 ± 12*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	9.0 ± 0.9	13.4 ± 1.1
	²²⁸ Ac (338.7)	11.8 ± 3.0	
	²²⁸ Ac (911.2)	15.2 ± 2.8*	19.1 ± 2.4**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	13.8 ± 8.9	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	14.1 ± 3.9	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		16.7 ± 3.3
⁴⁰ K	⁴⁰ K (1460.8)	109.15 ± 16.82	110.5 ± 1.7

Tabla B10. Resultados obtenidos para la muestra de carbón Belmonte

CARBÓN HUNOSA			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	26.5 ± 4.7	
	²³⁴ Th (63.3)	25.5 ± 5.1	
	²¹⁴ Pb (295.2)	28.4 ± 2.3	26 ± 12
	²¹⁴ Pb (351.9)	24.3 ± 1.6	18 ± 6*
	²¹⁴ Bi (609.3)	25.8 ± 2.2	22 ± 9*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	33.6 ± 1.3	37 ± 2
	²²⁸ Ac (338.7)	32.8 ± 4.0	
	²²⁸ Ac (911.2)	31.7 ± 4.6	35.8 ± 2.9**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	33.1 ± 9.8	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	36.3 ± 5.8	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		28.8 ± 4.6
	⁴⁰ K (1460.8)	380.6 ± 35.2	385 ± 5

Tabla B11. Resultados obtenidos para la muestra de carbón Hunosa

CARBÓN HUNOSA QUEMADO			
Pico/keV		Actividad/Bq·Kg ⁻¹	
		GeHP	INa(Tl)
²³⁸ U	²¹⁰ Pb (46.54)	19.8 ± 4.9	
	²³⁴ Th (63.3)	15.7 ± 4.5	
	²¹⁴ Pb (295.2)	20.9 ± 3.9	31 ± 11
	²¹⁴ Pb (351.9)	20.5 ± 1.5	12 ± 6*
	²¹⁴ Bi (609.3)	17.9 ± 2.1	15 ± 9*
²³² Th	²¹² Pb (238.6)	25.0 ± 1.1	28 ± 2
	²²⁸ Ac (338.7)	28.3 ± 3.7	
	²²⁸ Ac (911.2)	27.6 ± 3.6	32.3 ± 2.8**
	²⁰⁸ Tl (510.8)	25.8 ± 9.5	
	²⁰⁸ Tl (583.1)	30.4 ± 5.1	
	²⁰⁸ Tl (2614.5)		26.4 ± 4.5
	⁴⁰ K (1460.8)	240.5 ± 27.1	288 ± 4

Tabla B5. Resultados obtenidos para la muestra de carbón Hunosa quemado

10. Bibliografía

1. Krane, K.S. and D. Halliday, *Introductory nuclear physics*. 1988, New York: Wiley.
2. Tarbuck, E.J.L., *Ciencias de la Tierra: Una introducción a la Geología Física*. 2005.
3. Mario, G.R. and M.C. Eugenio, *Ingeniería química*. 2013: Editorial UNED.
4. Shen, X., *Coal, Oil Shale, Natural Bitumen, Heavy Oil and Peat*. 2009, Eolss Publishers.
5. Martín Matarranz, J.L., C. Sainz Fernández, and A. Universidad de Cantabria. Departamento de Física, *Riesgo radiológico de las industrias no nucleares*. 2013.
6. Zielinski, R.A. and R.B. Finkelman, *Radioactive elements in coal and fly ash: abundance, forms, and environmental significance*. 1997, US Geological Survey.
7. *IAEA-RGTh-1 , Thorium Ore*. International Atomic Energy Agency.
8. *IAEA-385*. International Atomic Energy Agency, .
9. *IAEA-RGU-1, Uranium Ore*. International Atomic Energy Agency.
10. *Genie 2000 Customization Tools Manual*. Canberra Industries Inc., 2004. **3.0**: p. 358,359.
11. Knoll, G.F., *Radiation detection and measurement*. Vol. 3rd. 2000, New York Wiley.
12. *Char of Nuclides*, in *Nuclear Data Sheets*. National Nuclear Data Center: Elsevier.