



Máster en Física y Tecnologías Físicas

Datación de sedimentos y evaluación de tasas de sedimentación mediante el análisis de isótopos radiactivos de origen natural y artificial usados como trazadores

Autor: Alberto Fernández García
Director: José Ezequiel Gómez Arozamena
Lugar de trabajo: Grupo de Física Médica

Objetivos – Los objetivos del trabajo son el estudio de las tasas de sedimentación y datación de sedimentos marinos a partir de la medida de los isótopos radiactivos naturales y artificiales presentes en el medio ambiente. También vislumbrar las causas de los cambios provocados en las tasas y en las variaciones de las concentraciones encontradas.

Metodología – Para lapsos de tiempo correspondientes a las últimas décadas, los de mayor influencia antropogénica, los métodos empleados han sido los basados en el isótopo ^{210}Pb de origen natural y en el ^{137}Cs de origen artificial. El testigo a estudiar fue recogido en la Ensenada de San Simón, lugar de la ría de Vigo (Galicia).

Desarrollos teóricos realizados – La posibilidad de relacionar la concentración de la actividad de ^{210}Pb presente en una muestra sedimentaria con la profundidad permite datar las diferentes capas del testigo mediante la aplicación de modelos matemáticos basados en dicho radioisótopo. El establecimiento de una cronología en la acumulación de sedimentos permitirá a su vez, estudiar la evolución temporal de la tasa de sedimentación durante los últimos 125 años en el lugar de recogida de la muestra. Describiremos los modelos CIC (Constant Initial Concentration) y CRS (Constant Rate of Supply).

Trabajo de laboratorio – La medida de las concentraciones de actividad de los isótopos de interés se ha llevado a cabo utilizando una cadena de espectrometría gamma; con el correspondiente estudio, calibración en energía y eficiencia, y puesta a punto del detector de germanio hiperpuro. El testigo a tratar se le sometió a los procesos descritos para poder ser manejado por el equipo de medida.

Resultados – Mostramos las capacidades que tiene este sistema de estudio de los fondos marinos, poniendo en el punto de mira a la actividad humana en los grandes cambios a los que se somete este entorno. También evidenciamos que los modelos descritos no son definitivos, y se tienen que validar con otras técnicas de diversa índole como geológicas, químicas, económicas e incluso históricas.

Líneas futuras – Este estudio se enmarca dentro del programa nacional de radiocronología de estuarios en el norte de España, como una de las variables a estudiar en cuanto al impacto humano en las desembocaduras de grandes ríos. El objetivo principal es determinar la cuantía de la aceleración de los procesos geomorfológicos en los últimos años. Líneas similares todavía no emprendidas sería la aplicación de los métodos a las riberas de los propios ríos.

Abstract – The study of the sedimentation rates and dating of sediments has been carried out for years using the disintegration of natural and artificial radioactive isotopes present in the environment. In periods of time corresponding to the last decades, those are with major anthropogenic influence, the used methods are those based ones on the isotope ^{210}Pb of natural origin and ^{137}Cs of artificial origin, both are used in this study. The possibility of relating the concentration of the activity ^{210}Pb present in a sedimentary sample with the depth allows dating the different caps of the cores by the applying mathematical models based in this radioisotope. The establishment of a chronology in the accumulation of sediments will allow in turn, to study the temporary evolution of the sedimentation rate during the last 125 years in San Simón's Inlet, a place in the Vigo's Ria. In this job we describe the models CIC (Constant Initial Concentration) and CRS (Constant Rate of Supply). We consider the conditions of their application to sediments placed in marshes and estuaries. The measurement of the concentrations of interest has carried out using gamma spectrometry, with the corresponding study, calibration in energy and efficiency, and adjustment of the hyper pure germanium detector HPGe.

Autor: Alberto Fernández García, email: albertofernandezgarcia2@hotmail.com

Director: José Ezequiel Gómez Arozamena, email: jose.gomez@unican.es

Fecha de entrega: 25-10-2012

Índice

1. Introducción	5
1.1. ^{210}Pb y ^{137}Cs como trazadores	5
1.2. Procedimiento y modelo	5
2. Metodología	5
2.1. Detectores de estado sólido	5
2.1.1. Propiedades físicas del semiconductor	5
2.1.2. Acción de la radiación ionizante en los semiconductores	8
2.1.3. Semiconductores como detectores de radiación	9
2.1.4. Características operacionales	10
2.2. Detector de germanio hiperpuro HPGe	11
2.2.1. Consideraciones generales	11
2.2.2. Configuración del detector de germanio	12
2.2.3. Características operacionales de los detectores de germanio	14
2.3. Espectroscopía gamma con detectores de germanio	15
2.3.1. Calibración en energía	17
2.3.2. Calibración en eficiencia	18
2.3.3. Cálculo de la actividad	21
3. Modelos de datación	23
3.1. ^{210}Pb como trazador de procesos ambientales	23
3.2. Modelos matemáticos. CIC y CRS	24
3.3. Validaciones del fechado mediante ^{137}Cs	27
4. Aplicación al estuario de Vigo	29
4.1. Recogida y tratamiento de muestras	29
4.2. Testigo ría de Vigo	30
4.2.1. Radiocronología	30
4.2.2. Aportaciones complementarias con metales pesados	37
5. Conclusiones	38

1. Introducción

1.1. ^{210}Pb y ^{137}Cs como trazadores

La datación en suelos marinos, lacustres y fluviales con ^{210}Pb se viene utilizando desde los primeros años de la década de los 70 del siglo pasado. Su implantación en la actualidad es universal y el refinamiento de su proceso ha crecido con el paso del tiempo. La serie natural del radio tiene entre sus componentes al citado isótopo y la medición en el sedimento marino de su actividad nos aporta una datación en profundidad, con un máximo de 125 años en su aplicación. La evolución humana hace que irremediamente los desechos producidos se vuelquen en nuestro entorno y las aguas no son una excepción, por lo que con este método hacemos de los limbos marinos verdaderos archivos naturales.

Como elemento confirmador del método de datación isotópica de origen natural, tenemos al ^{137}Cs , isótopo de origen artificial producido por pruebas nucleares entre los años 1950-1970 o como producto de la fisión nuclear. Corroborar los posibles picos de ^{137}Cs en un perfil de ^{210}Pb , hace posible la fiabilidad del estudio al que es sometido el core tratado.

1.2. Procedimiento y modelo

El método consiste en extraer un testigo en la zona previamente verificada como de calidad óptima para el estudio. Con el core preparado para ser medido calibramos en energía y eficiencia el HPGe para realizar con espectroscopía γ los perfiles de actividades de los isótopos requeridos para la datación y cálculo de tasas de acumulación de la muestra, concretamente el ^{210}Pb , el ^{214}Bi y el ^{137}Cs , aplicando dos de los modelos matemáticos utilizados en este campo como son el CIC (Constant Initial Concentration) y el CRS (Constant Rate of Supply).

2. Metodología

2.1. Detectores de estado sólido

2.1.1. Propiedades físicas del semiconductor

Los materiales semiconductores son aquellos que presentan bandas de energía para los electrones que existen dentro del sólido, debido a la red periódica del material cristalino que lo constituye. Otro denominador común de dichos materiales es la banda de energía prohibida que separa la banda de valencia la cual contiene a aquellos electrones que están unidos a la red y la banda de conducción en la que libremente se mueven los electrones que la componen. En el caso del silicio o del germanio, materiales utilizados en detectores de estado sólido, desde un punto de vista químico el tipo de fuerza atómica que utilizan en la constitución del cristal es el enlace covalente. Los electrones libres que se encuentran en la banda de conducción contribuyen a la conductividad eléctrica del cristal. La banda prohibida en un material semiconductor está en torno a una energía de tránsito de 1 eV,

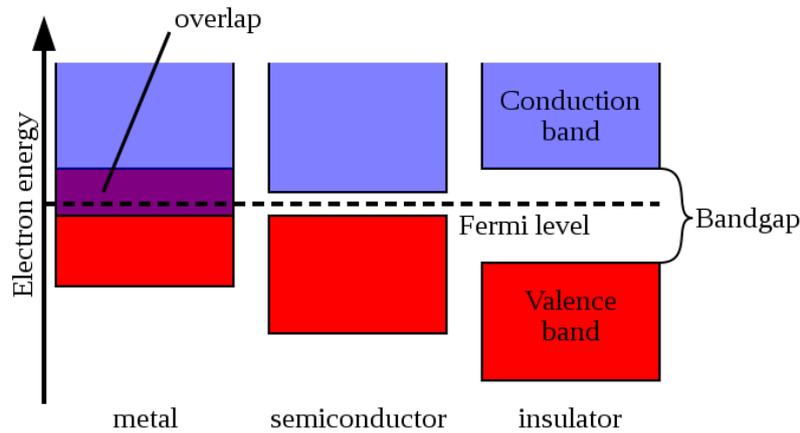


Figura 1: Bandas prohibidas para materiales del tipo conductor, semiconductor y aislante

que para comparar con otro tipo de sólido en este caso de perfil aislante su energía de la banda prohibida estaría en 5 eV o más.

A temperatura distinta de cero grados Kelvin, la energía térmica es compartida por los electrones en el cristal. En estas circunstancias será posible que un electrón de valencia, consiga la suficiente energía para atravesar la banda prohibida y pasar a la de conducción. El proceso de excitación electrónica no sólo trasvasa un electrón a la banda de conducción, sino que se crea un hueco en la banda de valencia. La combinación de los dos constituye un par electrón hueco y es aproximadamente análogo al par ion electrón en gases, que encontramos en los detectores de ionización.

Al aplicar un campo eléctrico los electrones libres se mueven bajo su influencia, los huecos representan una carga positiva y también se moverán, esta vez en dirección opuesta a los electrones. La conductividad del material es por lo tanto provocada por los movimientos tanto de los electrones como de sus equivalentes positivos, es decir los huecos. Materiales con una banda de energía grande tendrán una baja probabilidad de excitación térmica y consecuentemente mostrarán una baja conductividad eléctrica. Si la banda prohibida es baja, suficientes electrones por excitación térmica alcanzarán la banda de conducción, en este caso estamos ante un material semiconductor. Una esquematización del tipo de material en función de su banda prohibida podemos verla en la Fig. 1.

Si un campo eléctrico es aplicado al cristal, los electrones y los huecos experimentarán una migración en la red. El movimiento será debido a una velocidad térmica aleatoria y a una velocidad de deriva paralela a la dirección del campo aplicado. Los electrones se moverán en sentido contrario mientras que los huecos en el mismo que el campo eléctrico. Para bajas y medias intensidades del campo eléctrico la velocidad de deriva es directamente proporcional a dicho campo y a la movilidad μ definida para ambos tipos de partículas como

$$v_h = \mu_h E \quad (1)$$

$$v_e = \mu_e E \quad (2)$$

La velocidad de deriva aumenta más lentamente al aumentar el valor del campo eléctrico,

por lo que se alcanza una velocidad de saturación independiente del aumento de la magnitud del campo eléctrico. Estas velocidades de saturación están en torno a los 10^7 cm/s , que con dimensiones de 1 cm típicas del cristal semiconductor, estamos hablando de un tiempo de recolección de carga de 10 ns.

En ausencia de radiación ionizante, en un semiconductor completamente puro todos los electrones de la banda de conducción y todos los huecos de la banda de valencia han sido producidos por excitación térmica, dicho material es llamado semiconductor intrínseco, en la práctica es imposible de conseguir. Las propiedades eléctricas de los materiales reales tienden a ser dominadas por pequeños niveles de impurezas, incluso en materiales hiperpuros como el germanio de nuestro detector. Denominando a la concentración de electrones en la banda de conducción como n , y a la concentración de huecos en la banda de valencia como p , en un material intrínseco las concentraciones se igualan.

Si consideramos el efecto de pequeñas concentraciones de impurezas que están presentes en el semiconductor, bien como una cantidad residual después de los procesos de purificación, o bien intencionadamente añadidas para cambiar sus propiedades. Hablaremos primero de las impurezas pentavalentes, es decir grupo V de la tabla periódica, dichos átomos ocuparán un lugar de la red cristalina que si fuera pura estaría ocupado por un átomo del material semiconductor tratado. Estos átomos tienen cinco electrones de valencia, proporcionando cuatro enlaces covalentes y dejando un electrón sin enlace, este electrón es capaz de con muy poca energía pasar a la banda de conducción, es por ello que reciben el nombre de impurezas donadoras ya que contribuyen de una manera directa a dicha banda, este tipo de material recibe el nombre de semiconductor tipo n. Como no son parte de la red regular los electrones extra junto con las impurezas donadoras pueden ocupar una posición dentro de banda prohibida. El espaciado energético entre los niveles donadores y la parte inferior de la banda de conducción hace que mediante excitación térmica la mayoría de las impurezas tendrán la energía suficiente para saltar el electrón no enlazado a la banda de conducción. El efecto en la red de un material tipo n es crear una situación en la cual el número de electrones de conducción sea mucho más grande y el número de huecos sea mucho más pequeño que en un material puro. La conductividad eléctrica es entonces determinada casi exclusivamente por el flujo de electrones, así se les conoce como portadores mayoritarios.

Para construir un semiconductor tipo p, doparemos al cristal con átomos trivalentes, los correspondientes al grupo III de la tabla periódica. Haciendo el mismo papel que los de tipo n, pero en este caso provocando niveles de energía, llamados aceptores, cercanos a la parte superior de la banda de valencia, y haciendo que los huecos fluyan por la banda de valencia provocados de una manera directa por las impurezasceptoras. Por lo que tenemos que el número de huecos es mucho mayor y el número de electrones libres es mucho menor que un material puro. La conductividad eléctrica es por lo tanto en este caso determinada por el flujo de huecos.

No todas las impurezas aportan elementos al flujo de portadores de carga. Uno de los problemas que se tiene que tener en cuenta a la hora de analizar un material semiconductor para un detector de partículas, es la recombinación y el atrapado de los portadores de carga. Impurezas de oro, zinc, cadmio, u otros materiales metálicos presentes en el material semiconductor provocan niveles energéticos alrededor de la mitad de la banda prohibida.

Reciben el nombre de impurezas profundas, ya que están separadas de los extremos de la banda prohibida. El proceso que describen es el de recombinación de electrones y huecos provocando la aniquilación, y el de crear trampas para portadores en las que tiene que pasar un tiempo de retraso para que se vuelva a liberar dicho portador. Tanto la recombinación como las trampas de red contribuyen a la pérdida de portadores de carga y tienden a reducir la vida media promedio en el cristal. Los detectores de estado sólido que hoy disponemos tienen unos tiempos de recolección de carga del orden de $10^{-7} - 10^{-8} s$, siendo la vida media de los portadores del orden de $10^{-5} s$ [13], por lo tanto cristales con portadores de carga con esta vida media o mayor, son suficientes para construir un detector con dicho material.

2.1.2. Acción de la radiación ionizante en los semiconductores

Cuando una partícula atraviesa un cristal semiconductor va creando pares electrón hueco a lo largo de su trayectoria, si esta trayectoria acaba dentro del cristal se espera, en el mejor de los casos, recoger la energía total de la partícula. La cantidad de interés práctico que usamos para las aplicaciones del detector es la energía promedio gastada por la partícula para producir un par electrón hueco, recibe el nombre de energía de ionización ϵ . Esta energía es independiente de la energía y del tipo de la radiación incidente. La ventaja dominante respecto de otro tipo de detector es su pequeñez, su valor tanto para el silicio como para el germanio, materiales de referencia para los detectores de semiconducción, es de 3 eV, comparado con los 30 eV requeridos para crear un par ion electrón en un detector de ionización. El aumento del número de cargas tiene dos efectos beneficiosos, primero que la fluctuación estadística en el número de portadores es más pequeña por pulso debido a que se recogen 10 veces más cargas; y segundo la energía de ionización es a menudo predominante en la limitación de la resolución energética para un detector con incidencia de partículas de energía media y alta. A bajas energías la resolución está marcada por el ruido electrónico del dispositivo.

Más detalladamente se ven diferencias de la energía de ionización entre diferentes tipos de partículas a analizar, por ejemplo del orden del 2% entre iones ligeros y electrones rápidos [14]. Estas diferencias observadas hay que tenerlas en cuenta en la calibración, ya que usaremos el mismo tipo de partícula que en el proceso de medida. La energía de ionización es también dependiente de la temperatura, y este valor aumenta al disminuir la temperatura, por ejemplo el silicio tiene un 3% más de energía de ionización a la temperatura del nitrógeno líquido que a temperatura ambiente.

En los detectores formados por semiconductores la fluctuación estadística observada es más pequeña que la esperada, si el proceso se describiera mediante la distribución de Poisson. Es por lo tanto necesario introducir un factor que corrija esta desviación, es el llamado factor de Fano, entre la varianza estadística observada y la varianza predicha en el modelo de Poisson, es decir E/ϵ . Para una mejor resolución energética requeriremos un menor valor del factor de Fano.

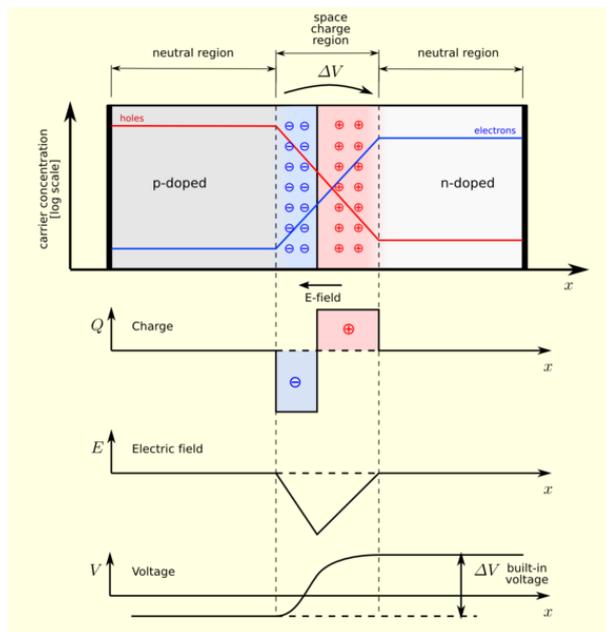


Figura 2: Podemos observar la densidad de carga, el campo eléctrico y el potencial producido en una unión p-n. La región no neutra es la llamada de agotamiento, y es en si la zona de detección.

2.1.3. Semiconductores como detectores de radiación

El cristal semiconductor por si mismo no es capaz de constituir un detector de radiación, es el diodo el dispositivo último electrónico capaz de realizar este cometido. El diodo no es más que la conjunción de una parte del cristal tipo n y otra parte tipo p. La formación de la unión p-n crea una zona espacial de carga entre los dos tipos de cristales, habiendo una difusión inicial de huecos hacia la región n y de electrones hacia la región p. Esta situación crea un gradiente de campo eléctrico a través de la unión el cual eventualmente para el proceso de difusión, dejando una region de carga espacial inmóvil. La densidad de carga, el campo eléctrico y el potencial, en esta región y en las zonas aledañas neutras se pueden ver en la Fig. 2. Esta zona del cristal es conocida como región de agotamiento, volumen activo o región espacial de carga, y es propiamente donde tiene lugar la producción de pares electrón hueco que serán recogidos por los electrodos. En esta zona un par electrón hueco que se cree al paso de la radiación ionizante será barrido por el campo eléctrico al que el diodo está sometido. La carga recogida será proporcional a la señal de corriente proporcionada por el dispositivo, análogo a los detectores de ionización.

La anchura de la región de agotamiento es pequeña, y depende fuertemente de la pureza del material. A través de un desarrollo matemático [15] partiendo de la ecuación de Poisson,

$$\frac{d^2V}{dx^2} = -\frac{\rho}{\epsilon} \quad (3)$$

llegamos a la expresión de la anchura de dicha región, la cual viene dada por

$$d \cong \left(\frac{2\epsilon V}{eN} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (4)$$

siendo N la concentración de impurezas con las que hemos dopado a la unión en el lado en el que el nivel es más bajo; ϵ y e son respectivamente la permitividad dieléctrica en el medio y la carga de un electrón; y V es el potencial de polarización inverso. La resistividad de un semiconductor dopado viene dada por,

$$\rho_d = \frac{1}{e\mu N} \quad (5)$$

donde μ es la movilidad del portador mayoritario definida en las ecuaciones (1) y (2). Expresando la anchura de la región de agotamiento en función de la resistividad tendremos

$$d \cong (2\epsilon V \mu \rho_d)^{\frac{1}{2}} \quad (6)$$

Ya que nos interesa tener una anchura de la región de agotamiento lo más grande posible, al estar directamente relacionada con la resistividad, a mayor pureza del material semiconductor mayor será la anchura de esta área.

El campo eléctrico intrínseco del diodo de unión p-n no será suficiente para detener a las partículas que lo atraviesen, dándose mayor protagonismo a las trampas y a la recombinación, y generando también un gran ruido electrónico. Es por ello que se aplica un voltaje de polarización inversa como podemos observar en la Fig. 3, es decir un voltaje negativo hacia el lado p del diodo, favoreciendo así la amplitud de la región espacial de carga, ya que se provoca la atracción por parte del voltaje negativo de los huecos y al revés del voltaje positivo de los electrones. Este voltaje tiene un máximo de aplicación, ya que a partir de un punto podríamos provocar una avería en el detector. En el HPGGe la zona de agotamiento tendrá un grosor de 1 cm, los niveles de impurezas son algo mayores en el Si, por lo que su zona de agotamiento se ve reducida drásticamente a unas pocas unidades de milímetro.

2.1.4. Características operacionales

Uno de los problemas implícitos en un detector de estado sólido es la corriente de fuga, ésta tiene un orden de magnitud del microamperio, teniendo su origen tanto en el volumen como en la superficie del cristal. Hay dos causas que provocan estas corrientes, la primera es referente a los portadores minoritarios que al contrario que los mayoritarios son capaces de atravesar la unión abrupta del diodo, estos portadores son generados continuamente a ambos lados de la unión y por lo tanto tienen difusión libre por todo el cristal, esta corriente será proporcional al área de la unión, aunque la intensidad es pequeña y rara vez importante en la corriente de fuga. Una segunda fuente sería la generación térmica de pares electrón hueco dentro de la región de agotamiento. Su tasa depende del volumen de la región de agotamiento, y disminuye con el enfriamiento del material. Detectores de Si no tienen corrientes de fuga grandes, pero de Ge debido a su menor banda de energía

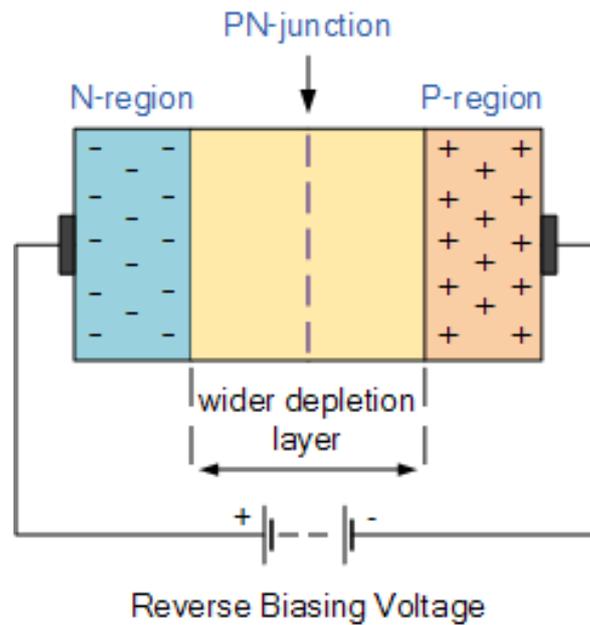


Figura 3: Representación de una unión polarizada inversa, donde la región de agotamiento tiene la mayor anchura.

prohibida, si que tendrían problemas con la corriente de fuga, por lo que son enfriados para poder ser operados óptimamente.

Otro de los problemas que hay que tener en cuenta a la hora de operar con un detector de este tipo, es el ruido generado en la medida. Hay tres tipos de fuentes de ruido a las que nos vemos abocados, la primera sería las fluctuaciones generadas en la corriente de fuga de volumen, la cual recibe el nombre de ruido corto; la segunda sería también las fluctuaciones de la corriente de fuga pero esta vez de superficie; y la tercera es el llamado ruido de Johnson asociado con resistencias en serie o contactos eléctricos pobres.

La reducción del ruido de la primera fuente se puede atenuar con el enfriamiento del cristal; respecto a la segunda es mucho más variable y depende de los métodos de fabricación y de la historia pasada del propio detector; y la tercera es eliminada si utilizamos detectores de agotamiento completo, como es en nuestro caso.

El ensanchamiento de pico ΔE es función de los tres tipos de ruido y viene dado de la siguiente manera

$$(\Delta E_{ruido})^2 = (\Delta E_{volumen})^2 + (\Delta E_{superficie})^2 + (\Delta E_{Johnson})^2 \quad (7)$$

2.2. Detector de germanio hiperpuro HPGe

2.2.1. Consideraciones generales

La profundidad de la región de agotamiento, también llamado volumen activo, puede aumentar con la disminución de la concentración de impurezas del material semiconductor, como vimos en la ecuación (4). Hay dos técnicas a usar para que un material semiconductor

alcance el nivel de impurezas requerido.

Por un lado estaría conseguir técnicas de refinado capaces de alcanzar aproximadamente 10^{10} átomos/cm³ [15]. Con este nivel de impurezas y utilizando voltajes del orden de los 1000 V la profundidad de agotamiento de un detector de germanio hiperpuro (HPGe) estaría en 1 cm.

La segunda forma de reducir las impurezas de la red y por tanto aumentar el volumen activo del detector es crear un material compensado en el cual las impurezas residuales son equilibradas por una concentración igual de átomos dopantes del tipo opuesto. El método utilizado es la deriva por iones de litio, el cual consiste en que impurezas residuales aceptoras son equilibradas sobre un grosor de 2 cm por la adicción de átomos donadores de litio intersticiales. El resultado es un material compensado, el cual tiene muchas de las propiedades de un material puro o intrínseco. Este tipo de detectores son los llamados de germanio dopados con litio Ge(Li). Tuvieron en los principios de la detección con semiconductores, alrededor de 1960, un gran auge, viéndose relegados 20 años después por los HPGe. El principal escollo de los Ge(Li) radica en que la habitación donde se encuentran alojados tiene que permanecer a baja temperatura, al contrario que los HPGe que pueden estar en una habitación a temperatura ambiente.

2.2.2. Configuración del detector de germanio

La técnica que se utiliza para el refinamiento del germanio hasta los límites de pureza deseables, es el calentamiento localizado en un extremo del cristal, haciendo de esa zona un material fundido, el cual atrae a las impurezas de toda la pieza, es entonces cuando se barren dichas impurezas del material. Después de muchas repeticiones de este procedimiento, se pueden llegar a alcanzar hasta el orden de 10^9 átomos/cm³ de impurezas. A pesar de la pureza del material siempre habrá un número pequeño de impurezas en exceso donadoras o aceptoras, que hacen al cristal del detector ser de tipo n o p respectivamente, su nomenclatura es conocida también por su ligereza en cuanto a la característica de dopado por ser de tipo μ o π respectivamente.

Hay dos tipos de disposiciones geométricas a la hora de construir un cristal que nos sirva como material semiconductor, siendo la planar y la coaxial las dos formas de construcción del dispositivo semiconductor. En la geometría planar la máxima distancia de agotamiento está entorno a 1-2 cm, y su volumen activo entre 10-30 cm³. Para espectroscopía gamma que es la que nosotros utilizamos en radiocronología de limbos marinos, necesitamos un volumen activo mayor, es por ello que utilizamos la geometría coaxial o cilíndrica, como ilustramos en la Fig. 4.

En dicha geometría los electrodos son colocados uno en la superficie interior y otro en la exterior, en función de que el material sea de tipo μ o de tipo π , específicamente los contactos exteriores son p^+ para el tipo μ y n^+ para el tipo π , y al contrario para los interiores. Este tipo de disposición geométrica nos da volúmenes activos del orden de 400 cm³, por lo que para el propósito buscado de medir desintegraciones γ , las cuales tienen menor sección eficaz de atenuación y absorción con el medio que otro tipo de radiación ionizante, es el mejor de los formatos posibles. La capa muerta o inactiva es la que se produce en los contactos que transmiten el campo eléctrico al cristal semiconductor; en

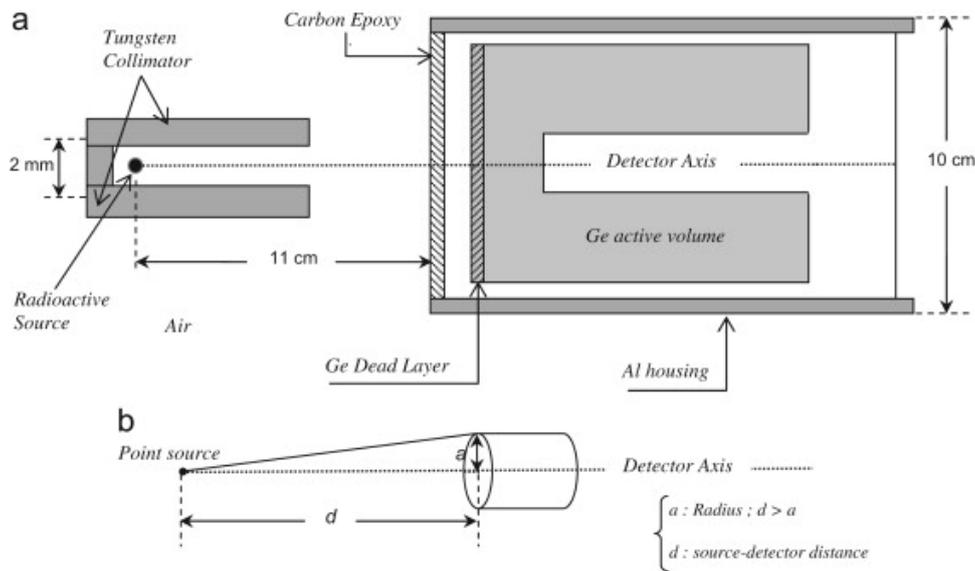


Figura 4: Representación gráfica de un detector en geometría coaxial con final cerrado, en la que en su interior colocamos la muestra a medir [11].

general la atenuación es despreciable, pero para rayos γ de baja energía, esto es menor que 100 KeV, la atenuación se convierte en un problema, bajando drásticamente la eficiencia en esa zona energética de radiación electromagnética incidente.

Dentro de la geometría coaxial hay dos tipos, la geometría coaxial a secas abierta por los dos extremos y la de final cerrado (tipo vaso). Es esta última la que tiene mejor aceptación comercial debido a que posee corrientes de fuga menores. En el caso de final cerrado el campo eléctrico no es completamente radial como en el caso coaxial con los extremos abiertos, y en las esquinas se reduce el campo eléctrico, ya que los portadores tienen menor velocidad. Para mitigar estas zonas de bajo campo eléctrico los acabados del cristal se hacen romos. Las muestras o fuentes a medir como hemos dicho se colocan sobre el cristal coaxial alcanzando así la mayoría de las desintegraciones el semiconductor, provocando una alta eficiencia en la detección.

El campo eléctrico en los detectores HPGe determina la velocidad de deriva de los portadores de carga, por lo que su configuración es importante respecto a varios factores como son la forma del pulso, el tiempo de subida y el estado completo del proceso de recolección de carga. Nos centraremos en la geometría usada, es decir la coaxial. Partiendo de la ecuación de Poisson en coordenadas cilíndricas,

$$\frac{d^2\varphi}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d\varphi}{dr} = -\frac{\rho}{\epsilon} \quad (8)$$

donde φ es el potencial eléctrico; ρ la densidad de carga que es dependiente del material con el que está fabricado, siendo para germanio de tipo π , $\rho = -eN_A$, con N_A como densidad de impurezas de los aceptores, y para material de tipo μ , $\rho = -eN_D$, representando N_D la densidad de impurezas donadoras. En las fórmulas que a continuación expresamos no distinguiremos entre el subíndice A o D , por lo que son generales para cristales tipo n o

p. El módulo del campo eléctrico para un detector coaxial con r_1 como radio interior y r_2 como radio exterior, usando la condición de contorno de la diferencia de potencial entre los dos radios $V = \varphi(r_2) - \varphi(r_1)$, y resolviendo la ecuación (8) para $E(r) = -d\varphi/dr$, viene dado por

$$|E(r)| = \frac{eN}{2\epsilon} + \frac{V - (\frac{eN}{4\epsilon})(r_2^2 - r_1^2)}{r \ln(\frac{r_2}{r_1})} \quad (9)$$

El perfil del valor absoluto del campo eléctrico es igual tanto para semiconductores tipo n como tipo p en configuración coaxial. La capacitancia por unidad de longitud en esta configuración vendrá expresada como

$$C = \frac{2\pi\epsilon}{\ln(\frac{r_2}{r_1})} \quad (10)$$

Debido a que es una ventaja minimizar la capacitancia del detector ya que es inversamente proporcional a la profundidad de agotamiento, estos se diseñan con el radio interior menor posible.

2.2.3. Características operacionales de los detectores de germanio

La característica dominante de los detectores de germanio respecto a otros tipos de detectores, como los de ionización o los de centelleo, o incluso respecto al mismo tipo, es decir de semiconductores pero de diferente material, como son los de silicio, es su excelente resolución energética. En la Fig. 5 podemos ver dos espectros para la misma fuente puntual de ^{60}Co con dos picos γ , el representado con color rojo ha sido obtenido con un detector de centelleo de cristal inorgánico NaI(Tl), y el representado con color azul con un detector de Ge, es evidente la mejor resolución energética de este último. Es por ello que hemos utilizado en la datación de sedimentos marinos dicho tipo de detector, ya que en la medida de la actividad de los tres isótopos tratados (^{210}Pb , ^{137}Cs y ^{214}Bi), la espectroscopía gamma es la más idónea.

La resolución en energía en los detectores de germanio está determinada por tres factores: La estadística inherente a la dispersión del número de pares producidos, las variaciones en la eficiencia de recolección de carga, y el error producido por la electrónica asociada. A la vez estos factores varían respecto a la energía de la radiación incidente, el tamaño y la calidad del detector. La resolución energética se cuantifica con la anchura a media altura del pico total del evento reflejado ($FWHM_T$)

$$FWHM_T^2 = FWHM_D^2 + FWHM_X^2 + FWHM_E^2 \quad (11)$$

El primer sumando $FWHM_D^2$ representa la fluctuación estadística de los pares electrón hueco creados y viene dada por

$$FWHM_D^2 = (2,35)^2 F\epsilon E \quad (12)$$

donde F es el factor de Fano, ϵ es la energía necesaria para crear un par electrón hueco y E es la energía del evento. Su contribución es la menor de las tres y nunca domina al resto.

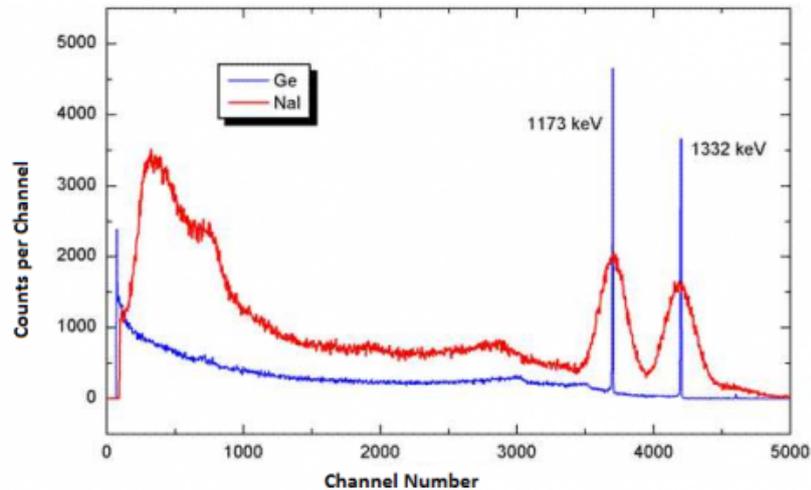


Figura 5: Dos espectros para una fuente de ^{60}Co con sus dos picos γ más representativos. En color azul se traza el espectro obtenido mediante un detector de Ge, mientras que en color rojo el obtenido mediante un detector de centelleo de material NaI(Tl). El espectro conseguido por el Ge tiene una FWHM (anchura a media altura del pulso) de 2 KeV, mientras que la FWHM por el NaI es de 70 KeV.

Respecto a la energía de la partícula incidente en detectores de HPGe, la anchura a medio altura crece con ella; la contribución mayor a la anchura a medio altura es a bajas energías el ruido electrónico y a altas energías mayor el aporte del término de recolección de pares electrón hueco. Respecto al tamaño del cristal también crece la anchura a medio altura con él, o dicho de otra manera baja la resolución energética con el aumento del tamaño del dispositivo semiconductor. El ruido es menor con la disminución de la capacitancia y a pequeños tamaños la capacitancia se reduce; además por pérdida de pares por trampas y recombinación de cargas la anchura aumenta con el tamaño del cristal, ya que se producen más procesos de este tipo.

Es por lo que en función de los procesos a describir teniendo como variable la energía a estudiar podremos elegir diferentes configuraciones estructurales del cristal de germanio.

El detector de Germanio debe de estar en contacto térmico con un vaso Dewar para enfriar el cristal, este proceso es realizado para reducir la corriente de fuga provocada por la creación de origen térmico de portadores de carga. En la Fig. 6, podemos ver un diagrama del propio detector en el que el cristal semiconductor está situado en el extremo del brazo del dispositivo.

2.3. Espectroscopía gamma con detectores de germanio

Como ya hemos introducido más arriba en espectroscopía gamma son dos los tipos de detectores posibles a utilizar, por un lado los de sistema compuesto de material centelleador, de ellos el más común es el fabricado con NaI(Tl), y por otro los detectores de germanio. La elección de uno u otro tipo de dispositivo viene marcada por la preferencia entre dos factores, los cuales son o bien la eficiencia de conteo, o bien la resolución en

mm de longitud. Dispone de una ventana de Be de 0.5 mm de espesor que permite el paso de radiaciones hasta una energía mínima de 5 keV. El cristal semiconductor esta unido mediante un dedo frío a un recipiente Dewar con nitrógeno líquido y situado en el interior de un blindaje de Pb de 10 cm de espesor. En la parte interior del blindaje se colocaron planchas de Cd y Cu con espesores de 0.1 cm cada una, para absorber los rayos X inducidos por el Pb y Cd respectivamente. El detector se encuentra unido a una cadena electrónica Canberra compuesta por una fuente de alimentación que opera a 3500 V, un preamplificador y un amplificador. Las señales procedentes de ésta son recogidas por un analizador Accuspec con tarjeta de ordenador.

2.3.1. Calibración en energía

La calibración en energía del detector, tiene como objetivo la asignación de cada canal a una energía dada. En su realización o bien introducimos una fuente gamma con múltiples picos o bien varias fuentes gamma monoenergéticas, en ambos casos evidentemente se deben de copar el rango de energías a estudiar en el trabajo. En nuestro caso hemos utilizado esta última opción.

En detectores de germanio la incertidumbre en la posición de un pico puede estar aproximadamente en 10^{-5} , la cual es la misma incertidumbre que tenemos en la calibración en energía [13]. El tipo de fuentes que nos van a ayudar a calibrar son rayos X para bajas energías, como rayos γ para medias y altas [12].

Una fuente ha sido de ^{137}Cs con desintegración γ de 661,657 KeV, el cual tiene desintegración β^- a ^{137}Ba , y este átomo emite a la vez rayos X (líneas $K_{\alpha 1}$ y $K_{\beta 1}$) con 32,194 y 36,378 KeV respectivamente. Con otra fuente hemos medido los dos picos de mayor intensidad del ^{207}Bi , que son los de energía 569,702 y 1063,662 KeV. También hemos utilizado como fuente para la puesta a punto del detector la del ^{198}Au con pico principal en 411,80205 KeV. La cuarta muestra utilizada en la calibración ha sido la del nucleido metaestable ^{116m}In , con una periodo de semidesintegración de 54,29 min, y rayos γ significativos de energía 416,86, 1097,326, 1293,558 y 1507,67 KeV. Finalmente en el espectro de calibración también aparecen rayos X del blindaje de plomo del detector (líneas $K_{\alpha 1}$ y $K_{\beta 1}$) con 74,969 y 84,839 KeV respectivamente. Estos datos de emisión fotónica han sido extraídos de la referencia bibliográfica [8] y están ilustrados en la Tabla 1.

Cuando se pretende medir con gran precisión hay que tener en cuenta la geometría fuente detector tanto por la fuente de calibración como por las muestras a medir. Es importante situar tanto unas como otras en la misma posición, de no ser así variaciones en torno a 100 eV en la localización del pico se pueden producir. Tales efectos los hemos tenido presentes a la hora de efectuar las medidas del testigo estudiado.

Los efectos de desplazamiento con la localización de la muestra respecto al cristal del detector, tiene dos efectos sobre la medida. Uno involucra la tendencia de producir electrones secundarios por los rayos γ incidentes, ya que hay una correlación entre la dirección de estos rayos y la dirección de los electrones que hacen que el campo eléctrico aumente; los electrones salen perpendiculares a la dirección de la radiación incidente, concretamente paralelos a su campo eléctrico, pero a mayor energía o velocidad de estos fotones la dirección de los electrones provocados por el efecto fotoeléctrico o el Compton hace que

Isótopo	Energía (KeV)	Canal
Ba-RX	32,194	94
Ba-RX	36,378	108
Pb-RX	74,969	228
Pb-RX	84,938	259
¹⁹⁸ Au	411,80205	1280
^{116m} In	416,86	1296
²⁰⁷ Bi	569,702	1771
¹³⁷ Cs	661,657	2059
²⁰⁷ Bi	1063,662	3313
^{116m} In	1097,326	3418
^{116m} In	1293,558	4031
^{116m} In	1507,67	4699

Tabla 1: Picos γ y rayos X utilizados para la calibración energética de nuestro detector HPGe. Hemos usado cuatro muestras radiactivas, junto con los rayos X del plomo que se utiliza para el blindaje del detector.

se desplacen hacia delante. Una segunda potencial fuente de desplazamiento de pico es la variación de la eficiencia en la recolección de carga en las diferentes regiones del material semiconductor. Estas diferencias provocan un ensanchamiento del pico cuando el detector es uniformemente irradiado sobre todo su volumen, en cambio si damos preferencia a una dirección específica, los fotones llegarán con abundancia a una región del volumen del cristal. Al variar la recolección de carga entre diferentes regiones del material semiconductor, la posición del pico podrá también desplazarse con la dirección de los rayos γ incidentes.

Los datos representados en la Fig. 7, nos muestran una perfecta correlación lineal entre el número de canal del dispositivo y la energía de los eventos entrantes. El ajuste lo hemos realizado por el método de mínimos cuadrados, dándonos un coeficiente de determinación de valor 1.

2.3.2. Calibración en eficiencia

Definimos la eficiencia absoluta de un proceso como la relación entre los eventos que emite la fuente y los recogidos por el detector, más concretamente por precisión de los resultados nos referiremos en adelante a la eficiencia de pico, que simplemente es la anterior pero fijada en el fotopico o pico de energía máxima. La eficiencia a la vez se distingue por dos factores uno geométrico y otro intrínseco, el primero depende de la forma de la fuente y de la situación respecto al cristal semiconductor, y el segundo se refiere a la cantidad de procesos registrados en función de los que llegan al propio semiconductor.

La calibración en eficiencia se utiliza para discernir lo efectivo que es nuestro detector en función de la energía del pico a estudiar. Una gran dificultad se presenta al no estar estandarizadas las dimensiones del cristal semiconductor, y es muy difícil determinar con precisión la medida de su volumen activo, por lo que es necesario periódicamente

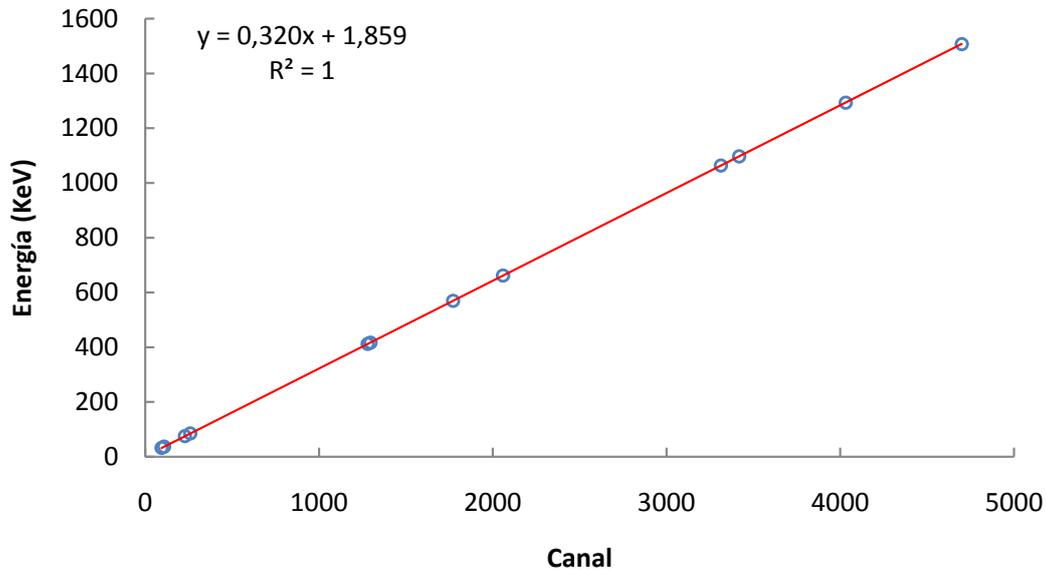


Figura 7: Calibración en energía del detector HPGe, representando el canal en función de la energía. El ajuste se realiza linealmente con resultado dado por $y = 0,320x + 1,859$ y con el coeficiente de determinación como $R^2 = 1$.

calibrar el detector de germanio. Tanto el recipiente donde va colocada la muestra como la posición relativa respecto al cristal deben de repetirse igualmente en la calibración y en la posterior medida, esto evidentemente lo hacemos para reducir los errores a la menor expresión, provocando un ángulo sólido lo más parecido posible, ya que la eficiencia tiene una fuerte dependencia de él.

La calibración se ha llevado a cabo con una fuente de radiación γ , en un rango de energía que abarca el que nos vamos a encontrar en las medidas a realizar. Para ello utilizaremos una fuente calibrada por un laboratorio de referencia acreditado, en nuestro caso hemos trabajado con una muestra denominada MR.EG.03, fabricada en el CIEMAT. La geometría y la masa de la muestra, por lo tanto su densidad, también marcan la eficiencia, por todo ello la fuente calibrada ha sido escogida con las características adecuadas en la medida posterior realizada, su densidad es de $0,97 \text{ g/cm}^3$, y la masa de 50 gramos [19].

Respecto a los recipientes donde van colocadas las muestras, son unos pequeños depósitos de 100 cm^3 de volumen, y de PVC como material, con la característica de tener una baja absorción gamma. Con una geometría estándar, la autoabsorción de la muestra, de volumen y composición similar, serán comparables.

Para el cálculo propiamente dicho de la eficiencia del detector, hemos utilizado la expresión

$$\epsilon(E) = \frac{N(E)}{AtP_{\gamma}(E)} \quad (13)$$

con N definido como las cuentas netas detectadas en la posición del fotopico; A sería la Actividad del día de hacer la calibración, ya que la muestra calibrada nos dan una actividad la cual hay que ajustar al día actual; t es el tiempo de la medida el cual ha

sido tomado igual que en las muestras del testigo es decir, 24 horas; y por último P_γ es la probabilidad de emisión gamma respecto a todas las posibles desintegraciones.

Para la incertidumbre de la eficiencia [1], aplicamos el cálculo de errores teniendo en cuenta que la variable a medir está relacionada con una proporcionalidad directa e inversa, por lo que tenemos

$$\left(\frac{\Delta\epsilon(E)}{\epsilon}\right)^2 = \left(\frac{\Delta N(E)}{N}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A}{A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta P_\gamma(E)}{P_\gamma(E)}\right)^2 \quad (14)$$

se ha excluido el tiempo en este cálculo, ya que suponemos una incertidumbre despreciable en su medida. En la Tabla 2 podemos comprobar los datos recogidos en el laboratorio para el cálculo de las eficiencias y de su incertidumbre $u(\epsilon)$, en el rango energético deseado.

Nucleido	Energía (KeV)	N	A_{hoj} (Bq)	Eficiencia
^{210}Pb	46,539	44698	417,983321	$0,0582 \pm 0,0024$
^{241}Am	59,5412	185562	178,319640	$0,0482 \pm 0,0023$
^{152}Eu	121,7817	104290	102,526233	$0,0471 \pm 0,0025$
^{152}Eu	244,6975	16996	27,399252	$0,0287 \pm 0,0016$
^{133}Ba	302,853	22528	49,614736	$0,02102 \pm 0,00096$
^{152}Eu	344,2785	50808	95,455458	$0,02464 \pm 0,00087$
^{133}Ba	356,017	77128	165,952738	$0,02152 \pm 0,00065$
^{133}Ba	383,851	13313	23,951942	$0,02573 \pm 0,00156$
^{137}Cs	661,657	171584	573,511019	$0,01385 \pm 0,00035$
^{152}Eu	778,904	11288	46,843882	$0,01116 \pm 0,00040$
^{152}Eu	964,079	8035	52,146963	$0,00713 \pm 0,00034$
^{152}Eu	1112,074	8596	48,611576	$0,00819 \pm 0,00031$
^{60}Co	1173,237	13894	84,151764	$0,00764 \pm 0,00019$
^{60}Co	1332,501	11374	84,151764	$0,00626 \pm 0,00016$
^{152}Eu	1408,006	8197	75,126981	$0,00505 \pm 0,00018$

Tabla 2: Datos recogidos para la calibración en eficiencia respecto a la energía de nuestro detector HPGe, las actividades de la muestra y la probabilidad de emisión son proporcionadas por el laboratorio de referencia, mientras que las energías de los picos tratados se han sacado de la referencia bibliográfica [8].

Una vez que la energía del detector ha sido calculada para los picos proporcionados por la muestra calibrada, representamos y ajustamos la curva. El cálculo del ajuste se realiza mediante una función empírica desarrollada para un detector de germanio coaxial con ocho parámetros a ajustar [2], el resultado se acerca al 1-2% de incertidumbre, y viene dado por,

$$\epsilon = \left(\frac{a_1}{E}\right)^{a_2} + a_3 \exp(-a_4 E) + a_5 \exp(-a_6 E) + a_7 \exp(-a_8 E) \quad (15)$$

No obstante una simplificación de la ecuación (15) es más que suficiente para tener buenos

resultados en el ajuste de los puntos conseguidos, esta expresión reducida es

$$\ln \epsilon = \sum_{i=0}^N a_i (\ln E)^i \quad (16)$$

En nuestro caso han sido necesarios sólo cuatro parámetros para lograr el objetivo errático prefijado, la curva de calibración por tanto vendrá definida por la ecuación (17), siendo su coeficiente de determinación, $R^2 = 0,980$. La Fig. 8 muestra dicho ajuste.

$$\ln \epsilon = -0,0105 \ln^3 E - 0,213 \ln^2 E - 1,17 \ln E - 4,77 \quad (17)$$

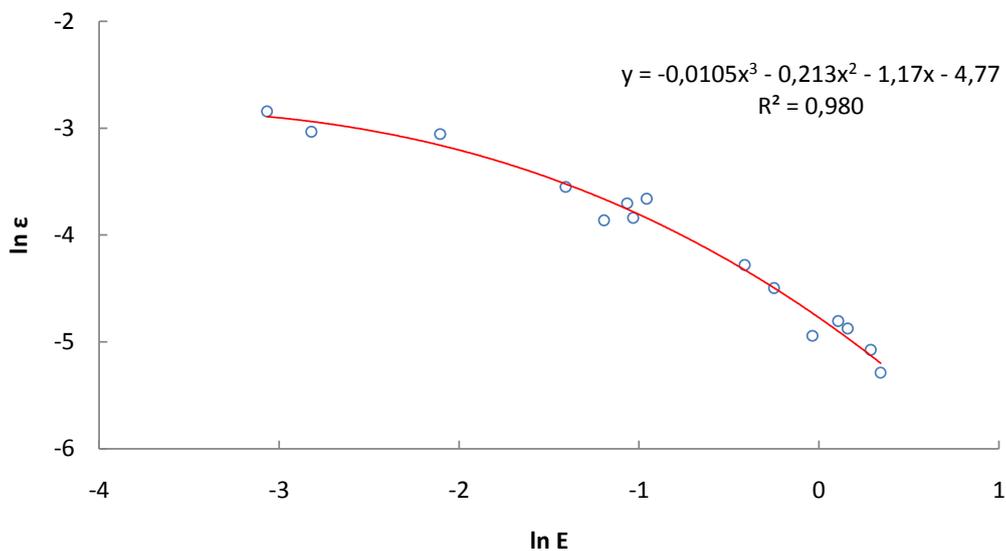


Figura 8: Curva de calibración obtenida para el detector HPGe, hemos utilizado una fuente calibrada por el CIEMAT, con referencia MR.EG.03, el ajuste le hemos obtenido con una función polinómica de grado 3 de la eficiencia en función de la energía.

2.3.3. Cálculo de la actividad

En el presente trabajo hacemos uso de la determinación de la actividad específica por unidad de masa, también nos referiremos a ella como la concentración de la actividad de la sección del core a medir. Es por ello que nos disponemos a definir su cálculo dada la importancia que tiene en el presente estudio. La actividad específica por unidad de masa simplemente será la actividad dividida por la masa de la sección del core, para su cálculo utilizamos la siguiente ecuación

$$A_m = \frac{N}{tmP_\gamma \epsilon} \quad (18)$$

con la variable N representando las cuentas netas del fotopico, es decir las cuentas totales menos el fondo; t es el tiempo de medida, el cual le situaremos en 24 horas para todas las

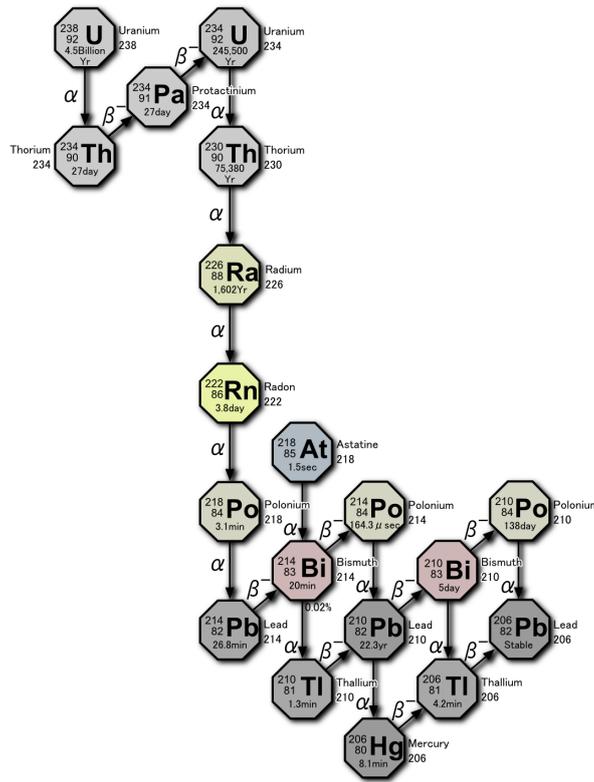


Figura 9: Serie radiactiva del radio de origen natural. De ellas se extrae la relación entre el $^{210}Pb_{base}$ y el $^{210}Pb_{ex}$, de la que se data temporalmente cada nivel del sustrato del suelo estudiado. Trabajamos con ^{226}Ra o con ^{214}Bi , para calcular el nivel base del ^{210}Pb , los cuales son ascendentes de éste.

medidas a utilizar en nuestro detector HPGe; m es la masa de la muestra, para normalizar los resultados hemos escogido 50 gramos como referente; P_γ es la probabilidad de emisión de fotones de origen nuclear de los isótopos estudiados respecto a los eventos totales provocados por dichos átomos; por último ϵ es la eficiencia para la energía considerada, si no tenemos el pico a estudiar en la fuente de calibración cogemos la eficiencia estimada a partir del ajuste realizado.

Para el cálculo de la incertidumbre asociada a la actividad específica por unidad de masa, utilizaremos la teoría de propagación de errores con el siguiente resultado,

$$\left(\frac{\Delta A_m}{A_m}\right)^2 = \left(\frac{\Delta N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\Delta P_\gamma}{P_\gamma}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon}\right)^2 \quad (19)$$

habiendo prescindido de las incertidumbres cometidas en el cálculo de las variables tiempo y masa, debido a su orden de magnitud bajo comparado con el resto.

3. Modelos de datación

3.1. ^{210}Pb como trazador de procesos ambientales

En la serie radiactiva del radio de origen natural, la cual comienza por el isótopo ^{238}U , nos encontramos con el ^{210}Pb , con periodo de semidesintegración de $t_{1/2} = 22, 23 \pm 0, 12a$ [8]. Teniendo en cuenta este dato, el ^{210}Pb puede ser detectado durante un intervalo temporal de hasta 5 veces su periodo de semidesintegración, es por tanto que alrededor de 125 años desde su formación el ^{210}Pb puede ser utilizado como trazador en procesos ambientales. En la naturaleza el ^{210}Pb respecto al ^{226}Ra o con nucleidos intermedios de la serie radiactiva como el ^{214}Bi en sistemas cerrados (como sustratos rocosos) se encuentran en equilibrio secular como podemos vislumbrar en la Fig. 9. Otro descendiente del ^{226}Ra , el único que existe en condiciones normales en estado gaseoso, el ^{222}Rn es el causante que en los suelos marinos, lagos o incluso ríos provoque un desequilibrio entre el $^{210}\text{Pb}_{base}$ y el nuevo ^{210}Pb incorporado al sustrato debido al gas radón.

Evidentemente el gas radón se exhala a la atmósfera desde los suelos, y en los terrenos con capas superiores cubiertas de agua como en el mar, ríos o lagos su escape se hace nulo, es por lo que hay un trasvase de ^{210}Pb de tierra firme a suelos marinos, fluviales o lacustres, debido al gas radón.

El periodo de semidesintegración del ^{222}Rn es $t_{1/2} = 3, 82d$, por lo que el ^{210}Pb descendiente del gas, lo hará en un corto espacio de tiempo, ya que los isótopos que se encuentran en medio suponen un intervalo temporal de tan sólo 51 minutos. En la atmósfera el ^{210}Pb , el cual tiene una alta reactividad, se asocia a los aerosoles de magnitud entre 0,05 a $2 \mu m$ y con ellos se deposita en la superficie terrestre y en agua que es el de nuestro interés. A nivel mundial los flujos de ^{210}Pb dependen de la región considerada, siendo mayores en los continentes que en los océanos, y principalmente están relacionados con la pluviometría local teniendo una fuerte correlación, aunque el flujo anual medio es similar [17].

En el propio medio acuático no sólo el ^{210}Pb procede de la atmósfera sino que su origen viene de las propia escorrentía de los ríos, que a la vez arrastra los elementos sólidos de la cuenca fluvial, dándose mayor cantidad de estos y por tanto de ^{210}Pb en días de lluvia torrencial; e incluso con lluvia en zonas deforestadas, ya que el agua transporta una mayor cantidad de material de pequeño calibre más proclive al transporte de átomos de ^{210}Pb .

Por todo lo dicho hasta el momento podemos recapitular que el ^{210}Pb en los lodos marinos, fluviales o lacustres se encuentra en exceso respecto al que tendría que haber si no hubiera una capa de agua sobre él. En el presente estudio hemos medido esta diferencia que encontramos en las diferentes secciones del testigo, entre el $^{210}\text{Pb}_{base}$ y el ^{210}Pb que medimos; el resultado será este isótopo del plomo en exceso $^{210}\text{Pb}_{ex}$, que debido a su desintegración radiactiva marcada por una exponencial decreciente nos datará respecto a la profundidad el suelo extraído en el estuario.

El sustrato a elegir para recoger el testigo tiene que estar en una zona de deposición libre de erosiones y de fuerte contaminación de material, es decir justo en el cauce más profundo de la ría la sedimentación es barrida por las corrientes, o un lugar en el que la deposición de vertidos humanos no sea directa; también deseamos que la presencia de bivalvos sea mínima, para que la bioturbación que provocan en suelos sea el menor posible,

ya que nos interesa examinar suelos lo más inamovibles temporalmente.

El fin principal desde que el oceanógrafo militar estadounidense Goldberg [9] en 1963 pronunciara una conferencia sobre la posibilidad de datación de fondos de agua marina o dulce de poca profundidad, es estudiar el impacto de fenómenos naturales, y de las actividades antropogénicas por causas dispares como son la construcción, las grandes empresas, embalses, etc. También podemos con los datos recogidos en una determinada zona predecir el futuro y los cambios a acometer para que no perjudique gravemente al entorno medioambiental que la limita.

La datación isotópica también se puede realizar con otros nucleidos de interés aunque de cronología más corta como son el ^{234}Th con $t_{1/2} = 24,10d$, el ^7Be con $t_{1/2} = 53,22d$ y el ^{228}Th con $t_{1/2} = 1,91a$. Se utilizan para datar sedimentos de muy corto espacio temporal, con un máximo de 10 años, y su utilización viene generada como complemento a nuestro proceso con ^{210}Pb . En el lado opuesto estaría el estudio a más largo plazo de los 125 años que soporta la datación con ^{210}Pb , aquí situamos el trabajo con ^{230}Th con $t_{1/2} = 7,53 \cdot 10^4 a$.

El ^{210}Pb es emisor α , β y γ , nosotros hemos realizado la medida sobre la desintegración nuclear fotónica de energía 46,539 KeV [8]. También es posible hacer el cálculo de la actividad por espectroscopía α a partir del descendiente ^{210}Po , e incluso aunque es menos frecuente con el uso de contadores proporcionales o detectores de centelleo líquido para el conteo de las desintegraciones β . Esta técnica tiene como ventajas que se trata de una medida no destructiva y por tanto permite la reutilización de las muestras para otros análisis, la preparación de las muestras no necesita procesos radioquímicos previos, y permite medir simultáneamente otros radionucleidos de interés como el ^{137}Cs , ^{241}Am , ^{226}Ra o el ^{234}Th . En contrapartida tiene unos tiempos de medición largos debido a la baja eficiencia de los procesos a medir, y la necesidad de disponer de secciones de core de al menos 50 gramos para tener resultados consistentes.

Uno de los radionucleidos de interés para medir el $^{210}\text{Pb}_{base}$ es el ^{226}Ra , siendo emisor γ con energía de 186,21 KeV y su línea coincide con la del ^{235}U con energía de 185,71 KeV, es por lo que se tasa la concentración con alguno de sus descendientes, en concreto el ^{214}Pb con $t_{1/2} = 26,8m$ o el ^{214}Bi con $t_{1/2} = 19,9m$. Nosotros hemos utilizado este último con energía de pico de 609,312 KeV, su incertidumbre respecto a medidas más precisas con el propio ^{226}Ra está entre el 5-10% por debajo del verdadero valor [10], esto lo hemos tenido en cuenta en los cálculos realizados para hallar la concentración de $^{210}\text{Pb}_{base}$.

3.2. Modelos matemáticos. CIC y CRS

Estos son los dos modelos más utilizados en la técnica de tasación de sedimentos. Antes de describirles de una manera rigurosa, vamos a definir los objetivos que buscan cualquiera de los modelos a utilizar. Con esta teoría que vamos a detallar se pretende datar temporalmente el testigo recogido, y más concretamente datar cada una de las secciones o capas que lo componen en función de la profundidad. También pretendemos medir la evolución tanto de la tasa de acumulación sedimentaria (s), como de la tasa de acumulación másica (r). El testigo es dividido en secciones iguales, con cortes transversales, las representamos por el subíndice i , cuando nos reframos a capas que no es más que una

profundidad puntual de dicho testigo usaremos la gráfica (i).

La tasa de acumulación sedimentaria de la sección i (s_i), con unidades expresadas por conveniencia en orden de magnitud como [$cm a^{-1}$], se define como el espesor de la sección (Δz_i) respecto al tiempo estimado en su formación (Δt_i), es decir

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

y la tasa de acumulación másica de la sección i (r_i) [$g cm^{-2} a^{-1}$], nos refleja la variación de la masa seca (Δm_i) por sección (S) y por el tiempo estimado en su formación

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

Los dos procesos se basan en dar una hipótesis simplificadora para poder calcular la concentración inicial de la sección i dada por la ecuación (22), f_i [$Bq m^{-2} a^{-1}$] representa el flujo medio durante la formación de la sección i

$$C_i(t = 0) = \frac{f_i}{r_i} \quad (22)$$

El modelo CIC (*Constant Initial Concentration*) supone como hipótesis, una concentración inicial de depósito del $^{210}Pb_{ex}$ constante

$$C_i(t = 0) = k \equiv C_0 \quad (23)$$

por lo que tenemos

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

Teniendo en cuenta la ley de desintegración radiactiva, a la que el ^{210}Pb está sometido por el paso del tiempo,

$$C_i = C_0 \exp(-\lambda t) \quad (25)$$

y extrayendo de esta última expresión t, nos queda la datación de la sección i,

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{C_0}{C_i} \quad (26)$$

El cálculo de C_0 es estimado ya que la primera sección medible es la C_1 , el método que hemos utilizado entre varios posibles es extrapolar su valor con el de las secciones más cercanas a la superficie.

La gran dificultad que arrastra este modelo es la debilidad de la hipótesis de partida, es decir suponer que la concentración inicial es constante quiere decir que la cantidad de masa anual siempre va a tener la misma proporción de $^{210}Pb_{ex}$. Esta suposición se restringe a zonas con poca presión humana, y con escasa variabilidad anual de precipitaciones u otros elementos erosivos de significancia [7].

El modelo CRS (*Constant Rate of Supply*) tiene como hipótesis de partida un flujo constante, es decir la cantidad de $^{210}Pb_{ex}$ anual, por área es la misma; esta hipótesis es

mucho más fuerte que la del anterior modelo descrito, ya que afirma que la aportación de ^{210}Pb extra por vía atmosférica y por erosión natural del entorno es constante en el tiempo [16]. Por lo que la ecuación (22) se transforma en,

$$C_i(t = 0) = \frac{f}{r_i} \quad (27)$$

es decir,

$$f = C_i(t = 0)r_i \quad (28)$$

la tasa de acumulación másica es inversamente proporcional a la concentración inicial, con esto se tiene en cuenta que el aumento de sedimentos depositados en el fondo acuático, por ejemplo por fuertes inundaciones, no vaya acompañado de un aumento de igual calibre del $^{210}\text{Pb}_{ex}$.

Definimos $A(i)$ como la actividad acumulada específica por unidad de área, esta variable simplemente es la actividad total del testigo para la capa inicial, esta cantidad dada la condición inicial de flujo constante hace que también se mantenga constante la actividad de todo el core, por lo que se puede decir que se establece un equilibrio entre la cantidad de $^{210}\text{Pb}_{ex}$ de aporte y de pérdida por desintegración radiactiva, con lo que la capa (i) sufre una desintegración con el tiempo

$$A(i) = A(i, t = 0) \exp(-\lambda t) \quad (29)$$

suponiendo la actividad inicial fija, nos lleva a la siguiente expresión

$$A(i) = A(0) \exp(-\lambda t) \quad (30)$$

con $A(0)$ constante, por lo que la edad de la capa (i) será

$$t(i) = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{A(0)}{A(i)} \quad (31)$$

La actividad acumulada por unidad de área, se puede obtener por integración de la siguiente manera

$$A(m) = \int_m^\infty \frac{C(m)}{S} dm \quad (32)$$

Teniendo en cuenta la desintegración radiactiva de la concentración en la capa (i) y la ecuación (22), tenemos

$$C(i) = C(i, t = 0) \exp(-\lambda t) = \frac{f(i)}{r(i)} \exp(-\lambda t) \quad (33)$$

con la igualdad (21) y la condición inicial de flujo constante, podemos escribir la actividad acumulada específica por unidad de área como

$$A(m) = \int_m^\infty \frac{f}{r(m)} \frac{\exp(-\lambda t)}{S} dm = \int_t^\infty f \exp(-\lambda t) dt = \frac{f}{\lambda} \exp(-\lambda t) \quad (34)$$

Comparando esta ecuación con (30), obtenemos

$$f = \lambda A(0) \quad (35)$$

Y recurriendo a la expresión (27), con la cual partíamos en esta explicación del modelo CRS, podemos calcular la tasa de acumulación másica en la sección i ,

$$r_i = \frac{f}{C_i(t=0)} \quad (36)$$

Utilizando la ecuación (33) para secciones y la (35)

$$r_i = \frac{\lambda A(0)}{C_i \exp(\lambda t)} = \frac{\lambda A(0) \exp(-\lambda t)}{C_i} \quad (37)$$

y por último con el empleo de la ecuación (30), llegamos al cálculo de la tasa de acumulación másica proporcionada por el modelo CRS

$$r_i = \frac{\lambda A(i)}{C_i} \quad (38)$$

donde tanto $A(i)$ como C_i pueden ser determinados experimentalmente.

3.3. Validaciones del fechado mediante ^{137}Cs

Una de las maneras de contrastar los resultados obtenidos por el estudio del $^{210}\text{Pb}_{ex}$, es la datación con ^{137}Cs . A pesar que el método utilizado con ^{210}Pb es consistente, a veces necesita un complemento para corroborar los datos hallados. El ^{241}Am , ^{239}Pu y ^{240}Pu también son utilizados en la datación por isótopos artificiales, no obstante su medida resulta mucho más costosa en tiempo y recursos.

Debido a las pruebas nucleares que varios países realizaron entre los años 1950-1970, es detectable un máximo de ^{137}Cs entorno al año 1963 debido a la difusión atmosférica global en la Tierra de éste y de otros nucleidos de origen artificial. El ^{137}Cs sólo se produce en pruebas nucleares de carácter militar y como residuo de la industria energética nuclear, otra vinculación también humana es la contaminación por fusión de chatarra en acerías, las cuales carecían de controles de radioprotección y hay varios casos mundiales de fuentes de uso científico utilizadas por error en la colada para producir acero.

La difusión de ^{137}Cs de origen militar no es homogénea en todo el globo terráqueo, dependiendo de su latitud [7]. En la Europa occidental son muchos los estudios en los que el pico de máxima actividad por ensayos militares es claramente fechado. En países donde la lluvia ácida provocada por el accidente de la central nuclear de Chernobyl en 1986, la nube tóxica tuvo un componente de dirección oeste, también ha sido recogido tal máximo de actividad. Incluso el accidente sufrido en la central nuclear de Windscale en las Islas Británicas en 1957 ha sido atestiguado en dichas islas, habiendo referencias de un testigo contiguo al de nuestro análisis, en el que se baraja como hipótesis [4]. En nuestro caso, como más adelante veremos no hemos recogido tal máximo, y su veracidad

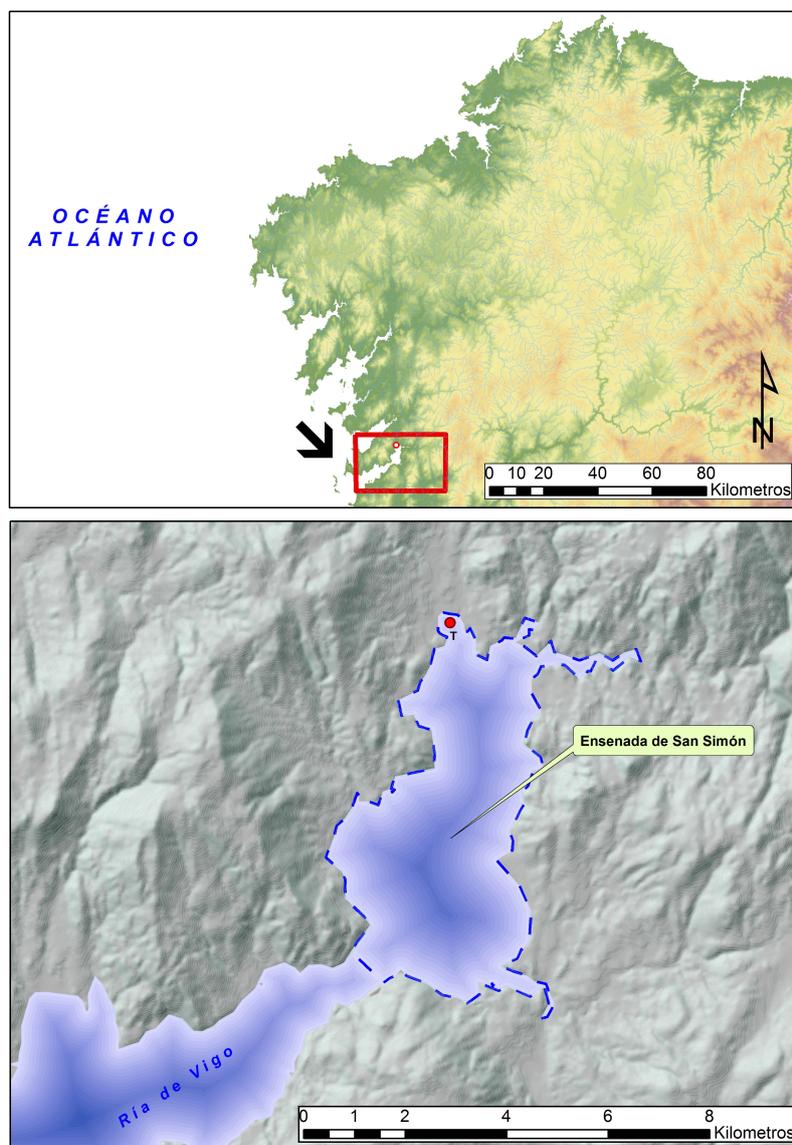


Figura 10: Mapa de relieve de la localización en la cornisa cantábrica del estuario de Vigo y en la parte inferior mapa del propio estuario, con la ensenada de San Simón lugar donde se extrajo el testigo, el cual le hemos marcado con la letra T.



Figura 11: Fotografía de las Salinas de Ulló, lugar de la Ensenada de San Simón. Podemos ver a la izquierda de la imagen la zona pantanosa donde se extrajo el testigo Vigo. El muro es el dique que separa las dos zonas de las antiguas salinas.

no está contrastada, ya que en múltiples cores analizados en estuarios del Mar Cantábrico no se ha localizado dicho pico de concentración [6].

No siempre es posible tal datación con ^{137}Cs , ya que se ha contrastado que dependiendo del tipo de suelo puede tener un gran componente móvil y soluble respecto al ^{210}Pb [20], es decir el ^{137}Cs no desaparece pero si que hace correr el pico hacia el fondo del testigo.

4. Aplicación al estuario de Vigo

4.1. Recogida y tratamiento de muestras

La datación del core de la ría de Vigo se enmarca dentro del proyecto CAMGEO (¿Cambio geomorfológico global? Implicaciones para la evaluación y predicción del riesgo de deslizamientos) (CGL2006-11431), Plan Nacional de I+D, Ministerio de Ciencia e Innovación, para el estudio de la evolución de los estuarios de toda la cornisa cantábrica. En este trabajo se han llevado a cabo la estimación de las tasas de acumulación a partir de la medida de la concentración de la actividad isotópica, mediante detector HPGe en ^{210}Pb , ^{214}Bi y ^{137}Cs del testigo de la ría de Vigo con localización geográfica visible en la Fig. 10, y su correspondiente análisis.

El aspecto fundamental para la reconstrucción histórica de cambios ambientales a partir del estudio de la columna sedimentaria, es la obtención de un core sedimentario inalterado, que permita obtener muestras cuyas propiedades estén tan bien preservadas como sea posible para los propósitos analíticos del estudio. Uno de los factores más importantes a evitar es el mezclado de los estratos sedimentarios, que es equivalente a la homogeneización del registro histórico y a la consecuente pérdida de resolución en la

descripción de los cambios ambientales.

Para minimizar el riesgo de recogida de muestras mezcladas es importante conocer lo mejor posible las características hidrodinámicas, batimétricas y sedimentológicas del área de estudio, así como las actividades antrópicas que se han desarrollado en sus alrededores, como la industria de cerámica de fuerte impacto en nuestro core situada en el noreste de la ría de Vigo.

Debemos evitar lugares con alto contenido de organismos como los bivalvos para que no influyan en la deposición del sustrato. Este tipo de invertebrados pueden acarrear una mezcla del sedimento denominada bioturbación. En ese sentido es conveniente escoger lugares de muestreo que presenten baja cantidad de oxígeno en el agua, por lo que la vida será escasa, en nuestro caso se eligió una zona de la Ensenada de San Simón, denominada Salinas de Ulló (Fig. 11) y que corresponde con un complejo de diques que da nombre a unas antiguas salinas que datan del S. XVII, que cumple con esta premisa.

Es importante también en la elección óptima del lugar a extraer el testigo buscar zonas de escasa corriente marina o fluvial, evitando la escorrentía, ya que esta vendrá en detrimento de la deposición atmosférica de los isótopos usados como trazadores sedimentarios.

El testigo debe de ser recogido en un tubo de PVC por simple presión hacia el sedimento, con un diámetro mayor de 8 cm para no interferir por fricción con el core [7], en nuestro caso se escogió uno de 20,8 cm. La dimensión de las secciones, a las que hemos sometido el corte transversal de la muestra con un alambre, han sido de 1 cm. Las secciones han sido secadas al aire y en estufa a 110°C, se han disgregado, tamizado a diámetro máximo de 2 mm y determinado su densidad. Posteriormente se han envasado en vasos tipo Marinelli en una masa de 50 gramos para normalizar los resultados, cerrándose herméticamente para no permitir la exhalación del ^{222}Rn , el cual está en estado gaseoso, y para alcanzar el equilibrio entre padres e hijos de la serie natural es necesario dejar la muestra lista para su medición un mes en reposo.

4.2. Testigo ría de Vigo

4.2.1. Radiocronología

En esta sección vamos a exponer los resultados hallados en el testigo recogido en la ría de Vigo, empezando por los datos reflejados en la Tabla 3, la cual nos muestra con su respectiva incertidumbre la actividad específica por unidad de masa del ^{210}Pb , ^{214}Bi , $^{210}\text{Pb}_{ex}$ y del ^{137}Cs . Como ya se ha mencionado en este trabajo el $^{210}\text{Pb}_{ex}$ es la diferencia entre el ^{210}Pb presente menos el $^{210}\text{Pb}_{base}$ calculado a partir del ^{214}Bi .

Con estos datos la primera representación gráfica que hemos construido del testigo Vigo (Fig. 12) es en función de la profundidad, las actividades del ^{210}Pb , y del $^{210}\text{Pb}_{base}$ dando la actividad de uno de sus antecesores como es el ^{214}Bi . Los datos se presentan con respecto a la capa en vez de la sección que es la que realmente se ha medido. Esto es debido a un proceso de suavizado que hemos realizado en pos de una mayor realidad de los resultados, usando el valor medio entre dos secciones, siendo éste el valor de la capa de sección infinitesimal.

El $^{210}\text{Pb}_{ex}$ se halla restando el ^{210}Pb total detectado del $^{210}\text{Pb}_{base}$, en la Fig. 13 hemos

Sección	Actividad ^{210}Pb (Bq kg^{-1})	Actividad ^{214}Bi (Bq kg^{-1})	Actividad $^{210}\text{Pb}_{ex}$ (Bq kg^{-1})	Actividad ^{137}Cs (Bq kg^{-1})
1	279 ± 13	102,9 ± 2,5	176 ± 14	36,4 ± 1,2
2	222 ± 11	74,5 ± 2,2	148 ± 11	17,67 ± 0,74
3	173,7 ± 9,0	58,9 ± 2,0	114,8 ± 9,2	13,88 ± 0,64
4	202 ± 10	71,6 ± 2,2	130 ± 10	14,79 ± 0,66
5	193,5 ± 9,8	69,1 ± 2,1	124 ± 10	14,57 ± 0,66
6	159,1 ± 8,4	56,4 ± 2,0	102,7 ± 8,7	10,37 ± 0,53
7	151,4 ± 8,1	89,4 ± 2,4	62,0 ± 8,5	12,90 ± 0,61
8	164,3 ± 8,6	55,9 ± 2,0	108,4 ± 8,9	18,20 ± 0,76
9	164,7 ± 8,6	53,6 ± 1,9	111,1 ± 8,9	19,34 ± 0,79
10	189,5 ± 9,6	53,1 ± 1,9	136 ± 10	23,47 ± 0,91
11	224 ± 11	60,5 ± 2,0	164 ± 11	39,0 ± 1,3
12	205 ± 10	62,2 ± 2,0	142 ± 10	47,9 ± 1,5
13	170,8 ± 8,9	61,3 ± 2,0	109,5 ± 9,1	31,6 ± 1,1
14	150,9 ± 8,1	59,8 ± 2,0	91,1 ± 8,3	20,95 ± 0,84
15	158,5 ± 8,4	58,9 ± 2,0	99,6 ± 8,6	17,71 ± 0,75
16	121,7 ± 7,0	63,1 ± 2,0	58,6 ± 7,3	19,60 ± 0,80
17	153,0 ± 8,2	57,8 ± 2,0	95,2 ± 8,4	12,63 ± 0,60
18	134,2 ± 7,5	60,8 ± 2,0	73,4 ± 7,7	13,73 ± 0,63
19	137,7 ± 7,6	59,2 ± 2,0	78,4 ± 7,8	8,11 ± 0,46
20	148,2 ± 8,0	69,1 ± 2,1	79,1 ± 8,3	12,14 ± 0,58
21	149,3 ± 8,0	63,5 ± 2,1	85,8 ± 8,3	12,96 ± 0,61
22	117,7 ± 6,8	57,9 ± 2,0	59,8 ± 7,1	12,51 ± 0,60
23	98,3 ± 6,1	69,7 ± 2,1	28,5 ± 6,5	11,47 ± 0,56
24	85,3 ± 5,6	75,4 ± 2,2	9,9 ± 6,0	14,06 ± 0,64
25	132,8 ± 7,4	72,9 ± 2,2	59,9 ± 7,7	10,82 ± 0,55
26	91,5 ± 5,8	84,1 ± 2,3	7,3 ± 6,3	9,49 ± 0,50
27	125,8 ± 7,1	84,4 ± 2,3	41,4 ± 7,5	10,19 ± 0,53

Tabla 3: Valores medidos de las actividades por unidad de masa de interés en el cálculo de $^{210}\text{Pb}_{ex}$ y del ^{137}Cs . Los datos están referidos a las 27 secciones de 1 cm en las que la diferencia entre el ^{210}Pb total y el $^{210}\text{Pb}_{base}$ resulta mayor que 0, es decir hasta el límite de muestreo del $^{210}\text{Pb}_{ex}$.

representado este valor. Se observa una tendencia exponencial decreciente, debida a la ley de desintegración radiactiva, ya que el tiempo es la única variable que afecta a la cantidad de $^{210}\text{Pb}_{ex}$ presente. Otro dato que no se nos puede pasar por alto es alrededor de la capa 11 un pico, el cual quizá provenga de sobrecontaminación añadida, que más adelante intentaremos dar posibles explicaciones a tal anomalía en la exponencial decreciente.

Aplicamos tanto el modelo CIC como el modelo CRS a los datos recogidos en el testigo. Con el primer método la concentración de la actividad de las diferentes secciones no presenta un perfil claro de disminución con la profundidad, debido a la debilidad de la

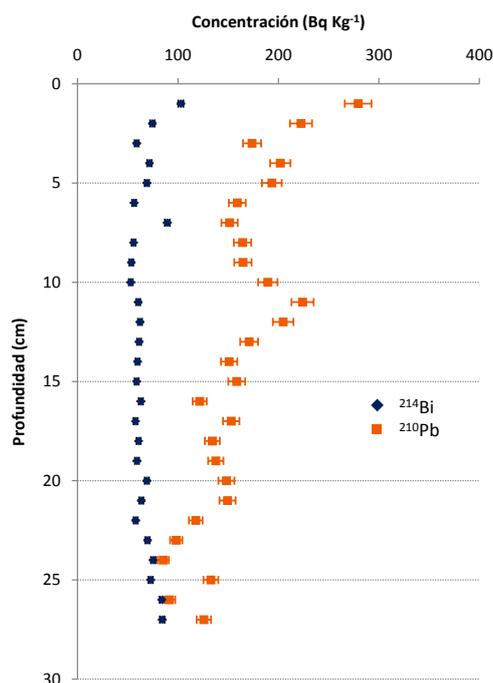


Figura 12: Concentración o actividad específica por unidad de masa para dos isótopos, ²¹⁴Bi y ²¹⁰Pb, la diferencia de estas dos actividades es la que nos va a dar el ²¹⁰Pb_{ex}.

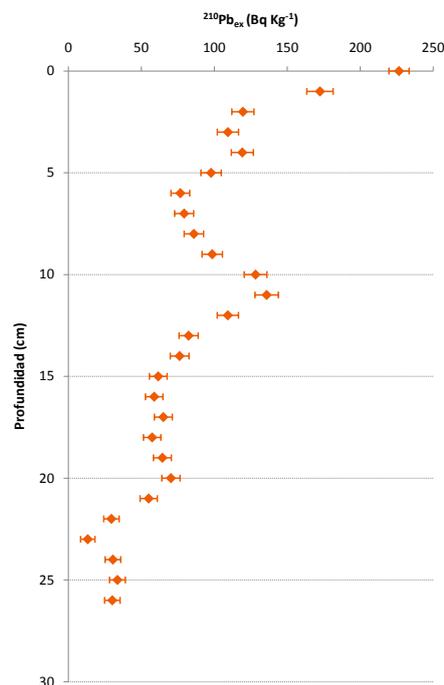


Figura 13: Gráfica del ²¹⁰Pb_{ex} en función de la profundidad, donde tiene una clara tendencia a una exponencial decreciente, propia de la ley de desintegración radiactiva.

hipótesis inicial del modelo, es decir no se puede considerar en este caso una concentración inicial constante. La datación temporal es inversa en algunas secciones, esto quiere decir que en secciones más profundas nos daría menor edad, lo cual si no ha habido movimientos del sustrato por causa externa no puede ocurrir.

En cuanto al modelo CRS expuesto parte de los datos hallados están dados en la Tabla 4. Hemos realizado los cálculos en función de la capa, como ya hemos mencionado más arriba debido a un proceso de suavizado de los perfiles hallados. Se considera más apropiado aplicar este modelo pues sus hipótesis se ajustan mejor a los datos obtenidos.

Capa $z(i)$ (<i>cm</i>)	Edad de la capa $t(i)$ años	Tasa de acumulación másica, $r(i)$ ($g\ cm^{-2}\ a^{-1}$)	Tasa de acumulación sedimentaria, $s(i)$ ($cm\ a^{-1}$)
0	0,00 ± 0,00	0,2265 ± 0,0070	0,554 ± 0,031
1	3,42 ± 0,43	0,213 ± 0,013	0,401 ± 0,033
2	5,83 ± 0,58	0,294 ± 0,021	0,235 ± 0,020
3	7,42 ± 0,66	0,297 ± 0,022	0,169 ± 0,016
4	9,74 ± 0,77	0,249 ± 0,017	0,1041 ± 0,0091
5	11,87 ± 0,88	0,294 ± 0,024	0,0974 ± 0,0093
6	13,59 ± 0,96	0,344 ± 0,030	0,0956 ± 0,0099
7	15,65 ± 1,04	0,315 ± 0,028	0,0746 ± 0,0078
8	17,6 ± 1,1	0,270 ± 0,022	0,0554 ± 0,0055
9	19,8 ± 1,2	0,224 ± 0,018	0,0414 ± 0,0041
10	22,2 ± 1,3	0,158 ± 0,011	0,0267 ± 0,0024
11	25,7 ± 1,5	0,1305 ± 0,0088	0,0203 ± 0,0018
12	29,1 ± 1,7	0,150 ± 0,012	0,0216 ± 0,0020
13	31,9 ± 1,9	0,181 ± 0,016	0,0244 ± 0,0026
14	34,5 ± 2,0	0,178 ± 0,017	0,0225 ± 0,0025
15	37,8 ± 2,2	0,220 ± 0,029	0,0258 ± 0,0036
16	39,6 ± 2,3	0,212 ± 0,029	0,0238 ± 0,0035
17	43,3 ± 2,6	0,159 ± 0,018	0,0166 ± 0,0020
18	46,7 ± 2,8	0,159 ± 0,019	0,0156 ± 0,0020
19	51,0 ± 3,1	0,122 ± 0,014	0,0113 ± 0,0014
20	57,3 ± 3,7	0,0870 ± 0,0099	0,00758 ± 0,00096
21	66,4 ± 4,6	0,089 ± 0,014	0,0072 ± 0,0012
22	74,2 ± 5,3	0,143 ± 0,037	0,0107 ± 0,0028
23	78,5 ± 5,7	0,34 ± 0,25	0,0239 ± 0,0175
24	80,2 ± 5,5	0,266 ± 0,250	0,0182 ± 0,0173
25	102,1 ± 8,4	0,067 ± 0,029	0,0042 ± 0,0018
26	110,2 ± 8,4		

Tabla 4: Tabla confeccionada a través del modelo CRS. Hemos recogido las variables más importantes, esta vez dadas por capas, que son la edad datada de la capa (i), y tanto la tasa de acumulación másica, como la tasa de acumulación sedimentaria.

En la Fig. 14 representamos la tasa de acumulación másica en función de los años, es decir nos marca la cantidad en masa de depósito respecto a la superficie y al tiempo. Vemos claramente un aumento de esta tasa respecto al tiempo, con una tendencia a la baja en torno a los años 70 recuperándose poco después. Los motivos tal vez sean a los que nos referiremos más adelante en este trabajo, respecto a la industria cerámica que existió en los alrededores. El máximo de tasa se produce alrededor del año 1993 con un valor de $0,344 \text{ Kg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$.

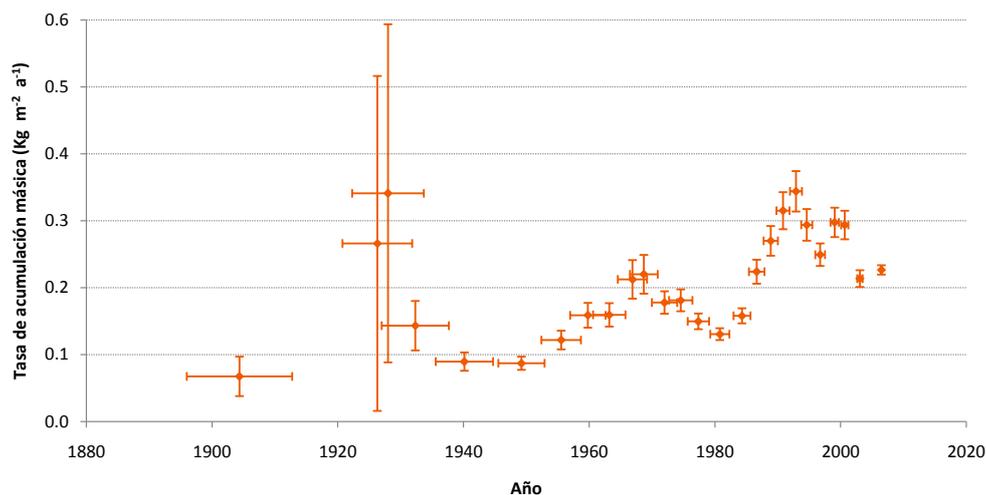


Figura 14: Tasa de acumulación másica en función de la datación obtenida por el modelo CRS.

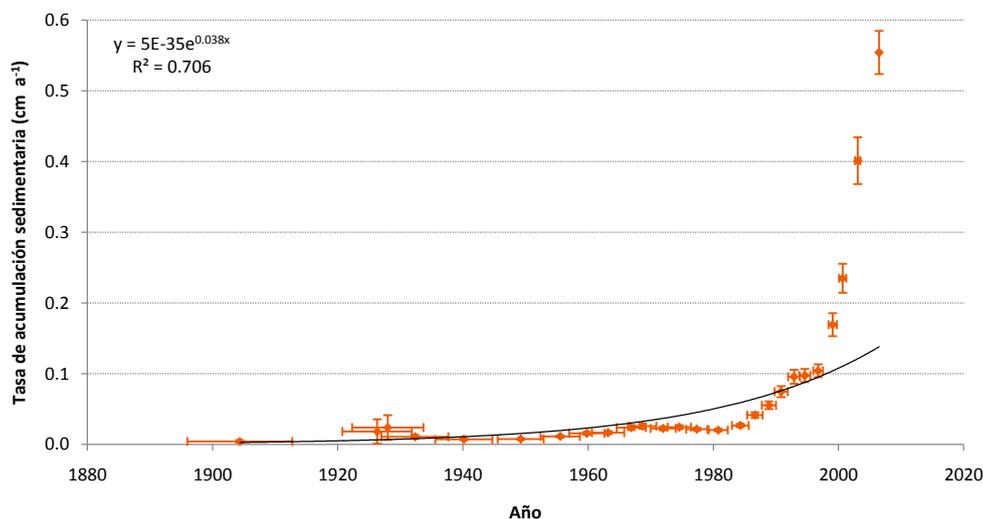


Figura 15: Tasa de acumulación sedimentaria en función de la datación.

Podemos ver en la Fig. 15 la tasa de acumulación sedimentaria como varía a lo largo de los últimos 110 años, con un ajuste exponencial. Evidentemente la razón de esta

subida de la tasa de sedimentaria se debe al impacto de la actividad antropogénica en la cuenca hidrográfica que envuelve a la ría de Vigo. La industrialización, la construcción masiva, y el simple aumento de la población en su entorno influyen en el aumento tan exacerbado de dicha acumulación sedimentaria, y por ende en el subsuelo marino. Este perfil es consecuente con otros estudios realizados en diferentes estuarios bañados por el Mar Cantábrico [3].

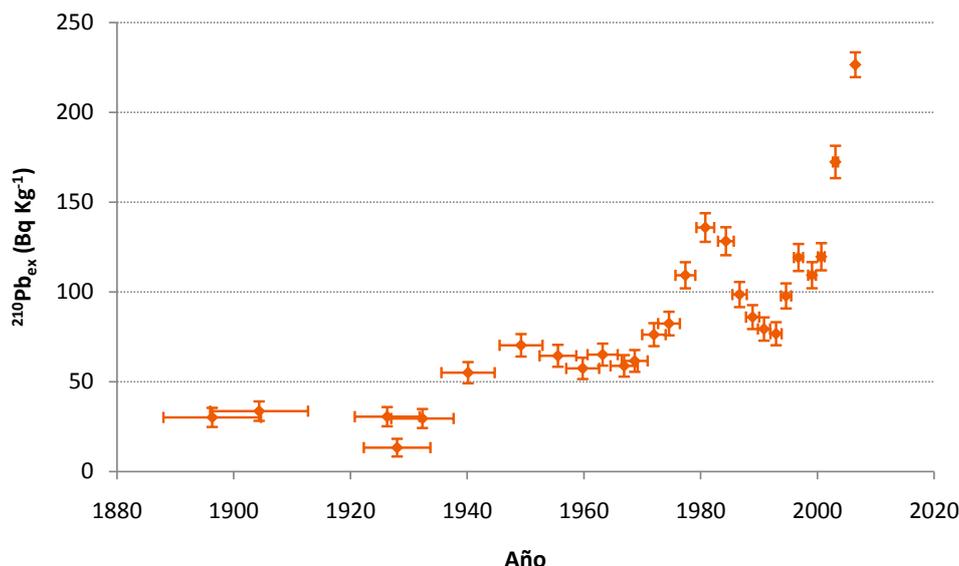


Figura 16: $^{210}Pb_{ex}$ en relación a la datación del testigo.

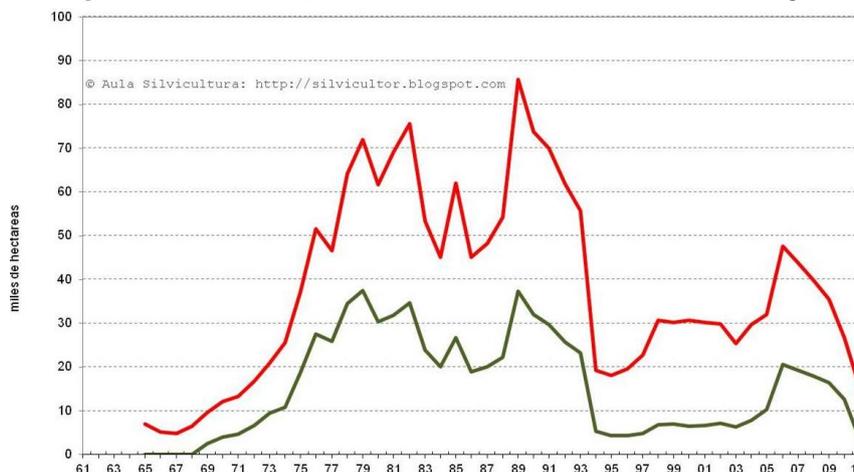


Figura 17: Evolución de la superficie quemada y la superficie arbolada quemada (medias pentanuales). Informe sobre incendios forestales en Galicia entre 1961 y 2011. (Fuente: Aula Silvicultura)

Es indudable que la ferviente actividad humana es responsable de un aumento exponencial en las tasas de acumulación sedimentaria, y por consiguiente es la responsable de

la transformación de los fondos marinos, extensibles a fluviales o lacustres. Estudiar el pasado nos hace poder ver el futuro de la transformación del suelo marino, y predecir por ejemplo la cantidad de trabajo que tendremos que realizar para dragar una bahía como ésta, para que continúe siendo navegable.

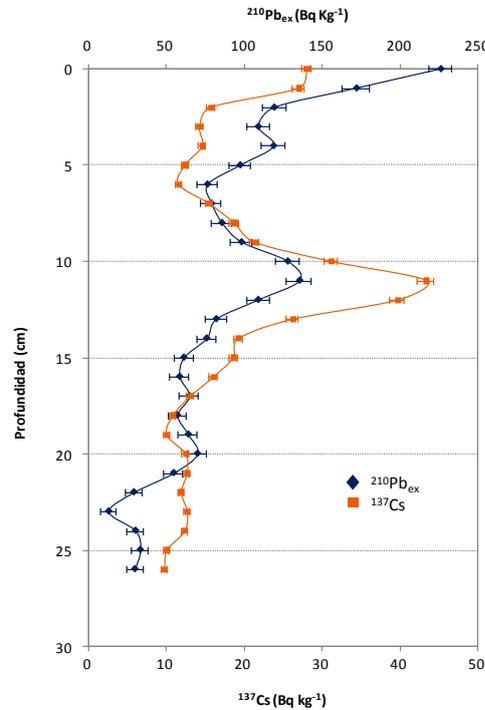


Figura 18: Perfil conjunto de $^{210}\text{Pb}_{ex}$ y ^{137}Cs en relación a la profundidad del core.

Hemos extraído una relación que nos ha parecido significativa por su aparente correlación, la cual es la actividad específica por unidad de masa del $^{210}\text{Pb}_{ex}$ en función de la datación, como podemos comprobar en la Fig. 16, en donde se ve un pico claramente marcado en torno a la década de los 80 del pasado siglo. Teniendo en cuenta que en las superficies quemadas se produce una escorrentía unas 8 veces mayor que en las no quemadas [21], y la Fig. 17 que nos da los incendios forestales y la superficie quemada ocurridos en Galicia en los últimos 50 años, tenemos en consideración que la mayoría de estos incendios están producidos en la provincia de La Coruña y la de Pontevedra, el estuario de la ría de Vigo se encuentra dentro de esta última, podemos deducir que la causa de esa anomalía en el $^{210}\text{Pb}_{ex}$ son los incendios forestales provocados por el hombre. Dando al sustrato marino un aporte extra de ^{210}Pb debido a la escorrentía añadida.

Una manera de confirmar la datación realizada en el testigo, es la relación del pico de ^{137}Cs sobre el año de máxima actividad atmosférica debido a las pruebas nucleares, siendo 1963 el correspondiente a dicho evento. En la Fig. 18 reflejamos el $^{210}\text{Pb}_{ex}$ en comparación con el perfil de ^{137}Cs . Existe un pico máximo de concentración claramente definido en la sección número 11 la cual hemos datado en el año 1981, por lo que este máximo es ajeno al referente a las pruebas nucleares. Hay que tener en cuenta que los picos de ^{137}Cs en

la cornisa cantábrica tienen una altura en torno a los 20 Bq Kg^{-1} [18], en cambio el que hemos reflejado en nuestro estudio dobla esta medida llegando a $47,9 \text{ Bq Kg}^{-1}$.

En el trabajo de Howarth et al. (2005) [4], se han recogido medidas de dos testigos a escasos metros del nuestro. Se observa también un pico de ^{137}Cs con una actividad similar, no obstante allí si que tienen añadido un perfil propio del pico que se le puede poner la etiqueta de 1963, el cual estaría en nuestro caso en torno a la sección 17. Como se ha dicho más arriba el ^{137}Cs tiene una componente móvil y soluble en alto grado, por lo que esa contaminación añadida puede haber ocultado dicho máximo debido a las pruebas nucleares, y haciendo imposible la corroboración de la datación isotópica mediante el ^{137}Cs .

4.2.2. Aportaciones complementarias con metales pesados

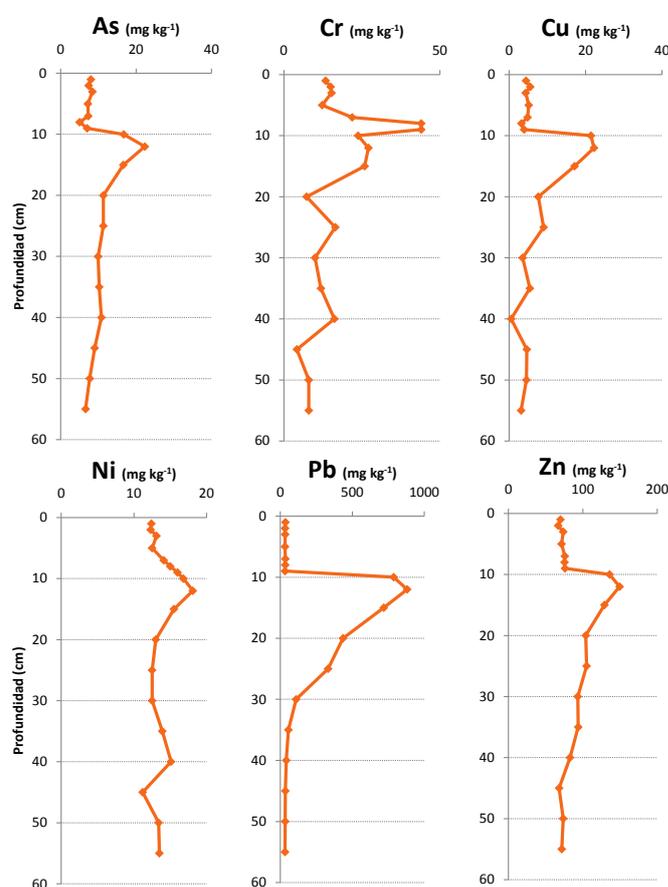


Figura 19: Perfil de metales pesados (As, Cr, Cu, Ni, Pb y Zn) hallados en el testigo Vigo.

Dentro del proyecto CAMGEO nuestro testigo ha sido medido en el Departamento de Minerología y Petrología de la Facultad de Ciencias y Tecnología de Bilbao. El resultado reflejado en la Fig. 19, da unos perfiles de concentración de metales pesados muy singulares, ya que hay un progresivo aumento de tales metales en el tiempo, hasta un máximo

alrededor de la sección 11 y una disminución de las concentraciones a partir de ese punto hasta la superficie de una manera muy acusada.

Es por tanto que la indagación en la historia industrial de la zona nos ha hecho llegar a la conclusión de la presencia influyente de la fábrica de cerámica situada a unos centenares de metros, Alfares de Ponte Sampaio (Pontesa) fundada en 1961 y cerrada en el año 2001, que o bien un cambio en el proceso de producción o bien una disminución en el volumen producido entorno a finales de los años 70 del pasado siglo (tiempo en el que sufrió una fuerte reconversión industrial), se reflejan en estos perfiles de metales pesados y también posiblemente en los anteriores, dando en esa misma sección del core un pico “extraño” de ^{137}Cs ; y en la tasa de acumulación másica y sedimentaria a finales de los 70 también se produce un mínimo en dichas tasas. Con todo ello podemos decir que de una manera indirecta aunque sin saber los motivos exactos, dicha fábrica de cerámica nos ha dado un punto de referencia para posibles estudios en la datación de este punto singular.

5. Conclusiones

Se ha puesto a punto un detector HPGe coaxial para la medida por espectroscopía γ de la actividad específica por unidad de masa del $^{210}\text{Pb}_{ex}$. Para ello inicialmente hemos tenido que calibrar en energía y eficiencia el detector, haciendo con posterioridad medidas por secciones del testigo recogido en la ría de Vigo de las actividades de los isótopos de interés. Los modelos matemáticos que hemos utilizado para la datación del testigo y la evolución de las tasas de acumulación son el CIC (*Constant Initial Concentration*) y el CRS (*Constant Rate of Supply*). El primero de ellos le hemos desestimado ya que no presenta un perfil claro de disminución de la actividad con la profundidad, dada la debilidad de su hipótesis inicial.

Con el modelo CRS hemos datado en consonancia con otros estudios de la zona el testigo marino recogido en la ría de Vigo; exceptuando el pico de ^{137}Cs entorno al año 1963 de las pruebas nucleares que se hicieron a nivel mundial, el cual no ha sido encontrado en nuestro trabajo, bien por su gran facilidad de solubilidad y movilidad, o tal vez porque el pico entorno a la sección 11 de doble amplitud haya podido ocultarlo. Hemos comprobado que hay un antes y un después alrededor de 1980, reflejado en los perfiles de metales pesados; en una disminución de tanto la tasa de acumulación másica, como de la tasa de acumulación sedimentaria; en un máximo de gran amplitud de ^{137}Cs ; en un máximo de $^{210}\text{Pb}_{ex}$. Por lo que en ese punto ha ocurrido un cambio en el entorno de magnitud considerable, dejando la puerta abierta a posteriores estudios sobre su origen. Aquí hemos dado como hipótesis la empresa de cerámica que operaba en la zona en aquel tiempo. Sobre todo sería de interés deducir el origen del pico de ^{137}Cs en torno a ese año de 1980, aunque en principio sus niveles no son nocivos para la población, el conocimiento de su procedencia podría ser beneficioso.

Es sabido que la mayoría del aporte extra de ^{210}Pb al sedimento viene por vía húmeda de la atmósfera. Una de las preguntas que me han surgido en la realización del presente trabajo y que no he logrado responder, siendo una posibilidad de líneas futuras de investigación, es que tanto por ciento del flujo depositado en el lecho marino (supuesto constante

en el modelo CRS) es debido al aporte directo de la precipitación y cual es debido a el mismo aporte pero originado por la escorrentía del entorno. Esto por ejemplo influirá en superficies quemadas, donde la contribución de la escorrentía es mayor que en suelos sin deforestar.

El estudio que hemos realizado sobre el core de la ría de Vigo, utilizando el método de datación isotópica, nos da una visión de la influencia antropogénica del entorno en un espacio temporal de unos 125 años. Esta datación debe de estar incluida en una serie de medidas interdisciplinares, ya que por si sola son evidentes sus limitaciones y no es concluyente. Los márgenes de actuación pueden ser muy distintos como físicos, sociológicos, geológicos, químicos, económicos, atmosféricos o históricos. Es por ello que la datación de los sedimentos marinos es una ciencia en ciernes con un largo y fructífero camino por recorrer, para el bienestar de la sociedad en la que vivimos.

Referencias

- [1] S. Harb, K. Salahel Din and A. Abbady. Study of efficiency calibrations of HPGe detectors for radioactivity measurements of environmental samples. In *Proceeding of the 3rd Environmental Physics Conference*, pages 207–218, Feb. 2008.
- [2] L. A. McNelles and J. L. Campbell. *Nuclear Instrument and Methods in Physics Research*, 109:241, 1973.
- [3] V. M. Bruschi, J. Bonachea, J. Remondo, J. Gómez-Arozamena, V. Rivas, G. Méndez, J. M. Naredo and A. Cendrero. Analysis of geomorphic system’s response to natural and human drivers in northern Spain: Implications for global geomorphic change. *Geomorphology*, pages 1–13, 2012.
- [4] Richard J. Howarth, Graham Evans, Ian W. Croudace and Andrew B. Cundy. Sources and timing of anthropogenic pollution in the Ensenada de San Simón (inner Ría de Vigo), Galicia, NW Spain: an application of mixture-modelling and nonlinear optimization to recent sedimentation. *Science of the Total Environment*, 340:149–176, 2005.
- [5] Alma V. de Groot. *Salt-marsh sediment. Natural γ -radioactivity and spatial patterns*. PhD thesis, University of Amsterdam, Amsterdam, 2009.
- [6] A. Cearreta, I. Ulibarra, M. J. Irabien, L. Yusta, E. Leorri, I. W. Croudace et al. Recent salt marsh development and natural regeneration of reclaimed areas in the Plencia estuary, N Spain. estuar coast. *Shelf Sci*, 54:863–886, 2002.
- [7] Joan Albert Sánchez Cabeza, Misael Díaz Asencio y Ana Carolina Ruiz Fernández. *Radiocronología de sedimentos costeros utilizando ^{210}Pb : modelos, validación y aplicaciones*. International Atomic Energy Agency, Mónaco, 2011.
- [8] S. Y. F. Chu, L. P. Ekström and R. B. Firestone. *Table of Radiactive Isotopes*. Berkley National Laboratory and Lund University, Version 2.0, 1999, [www Table of Radioactive Isotopes](#).
- [9] E. D. Goldberg. Geochronology with ^{210}Pb in “radioactive dating”. In *Internacional Atomic Energy Agency Symposium Proceedings*, pages 121–131, Oct. 1963.
- [10] M. L. Smith, L. Bignell, D. Alexiev, L. Mo and J. Harrison. Evaluation of lead shielding for a gamma-spectroscopy system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, pages 1–5, 2008.
- [11] A. Elaniquea, O. Marzocchia, D. Leonea and L. Hegenbarta. Dead layer thickness characterization of an HPGe detector by measurements and Monte Carlo simulations. *Applied Radiation and Isotopes*, 70:538–542, 2012.
- [12] J. Kern. Gamma ray standards. *CONF-7210117*, page 345, 1974.

- [13] Glenn F. Knoll. *Radiation Detection and Measurement*. University of Michigan, Ann Arbor, fourth edition, 2010.
- [14] R. A. Langley. *Nuclear Instrument and Methods in Physics Research*, 113:109, 1973.
- [15] William R. Leo. *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A How-to Approach*. Springer-Verlag, New York, second edition, 1994.
- [16] J. A. Sánchez Cabeza, I. Ani Ragolta and P. Masqué. Some considerations of the ^{210}Pb constant rate of supply (CRS) dating model. *American Society of Limnology and Oceanography*, 45 (4):990–995, 2000.
- [17] J. García Orellana, J. A. Sánchez Cabeza, P. Masque, A. Ávila, E. Costa, M. D. Loye Pilot and J. M. Bruach Menchen. Atmospheric fluxes of ^{210}Pb to the western Mediterranean Sea and the Saharan dust influence. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 111:1–9, 2006.
- [18] S. P. Nielsen. A box model for north-east atlantic coastal waters compared with radioactive tracers. *J. Mar. Syst.*, 6:545–560, 1995.
- [19] M. L. Romero, M. C. Fernández, C. Gascó, E. García-Toraño, J. A. González, M. C. Heras, M. Montero y R. Núñez-Lagos. *Procedimiento para la evaluación de incertidumbres en la determinación de la radiactividad ambiental*. Consejo de Seguridad Nuclear, Madrid, 2003.
- [20] I. D. L. Foster, T. M. Mighall, H. Proffitt, D. E. Walling and P. N. Owens. Post-depositional ^{137}Cs mobility in the sediments of three shallow coastal lagoons. *Journal of Paleolimnology*, 35:881–895, 2006.
- [21] X. Úbeda y M. Sala. Cambios en la física del suelo e incremento de la escorrentía y la erosión tras un incendio forestal. In *IV Reunión de Geomorfología*, pages 559–572, Ap. 1996.