

Puesta a Punto de un Sistema de  
Espectrometría Gamma para la  
Determinación de Cs-137 en  
Suelos Españoles

M. Barrera  
M. L. Romero  
F. Valiño



Toda correspondencia en relación con este trabajo debe dirigirse al Servicio de Información y Documentación, Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas, Ciudad Universitaria, 28040-MADRID, ESPAÑA.

Las solicitudes de ejemplares deben dirigirse a este mismo Servicio.

Los descriptores se han seleccionado del Thesauro del DOE para describir las materias que contiene este informe con vistas a su recuperación. La catalogación se ha hecho utilizando el documento DOE/TIC-4602 (Rev. 1) Descriptive Cataloguing On-Line, y la clasificación de acuerdo con el documento DOE/TIC.4584-R7 Subject Categories and Scope publicados por el Office of Scientific and Technical Information del Departamento de Energía de los Estados Unidos.

Se autoriza la reproducción de los resúmenes analíticos que aparecen en esta publicación.

Catálogo general de publicaciones oficiales  
<http://www.060.es>

**Depósito Legal:** M -14226-1995

**ISSN:** 1135 - 9420

**NIPO:** 471-08-030-5

Editorial CIEMAT

## CLASIFICACIÓN DOE Y DESCRIPTORES

S11

CESIUM 137; GAMMA SPECTROMETERS; RESEARCH PROGRAMS; RADIOACTIVE MATERIALS; SOILS; SPAIN; ENVIRONMENTAL IMPACTS; FISSION PRODUCTS; MIGRATION

## **Puesta a Punto de un Sistema de Espectrometría Gamma para la Determinación de Cs-137 en Suelos Españoles**

Barrera, M.; Romero, M. L.; Valiño, F.

49 pp. 9 figs. 10 Tablas 15 refs.

### **Resumen:**

El documento detalla la metodología empleada en las instalaciones del CIEMAT para la medida por espectrometría gamma del radioelemento Cs-137 en suelos del territorio peninsular español. El trabajo es parte de un amplio proyecto de investigación, desarrollado conjuntamente por la Universidad del País Vasco (UPV-EHU) y el CIEMAT, financiado por el Plan de I+D del Consejo de Seguridad Nuclear “*Contenido y migración de radiocesio y radioestroncio en suelos españoles*”. El proyecto pretende establecer una referencia de fondo radiactivo de origen artificial en suelos españoles, frente a la cual evaluar una posible liberación accidental de material radiactivo al medio ambiente. A tal fin se han obtenido 34 perfiles de zonas de suelos característicamente españoles, donde se ha determinado la concentración de actividad depositada de los productos de fisión Cs-137. En esta publicación se describe el equipo empleado, su puesta a punto, el desarrollo de las medidas, así como la verificación experimental de la metodología empleada. Se describen también los resultados obtenidos para los perfiles de actividad e inventarios del radioelemento. Además del establecimiento de los niveles de referencia, los resultados de este trabajo servirán como punto de partida para posteriores estudios, entre otros, el estudio de la distribución espacial en el territorio, la determinación de la correlación entre la actividad depositada y las condiciones meteorológicas, así como la obtención de los parámetros de migración de los radioelementos en los suelos en condiciones mediterráneas.

## **Calibration of a Gamma Spectrometry System Used for the Determination of Cs-137 in Spanish Soils**

Barrera, M.; Romero, M. L.; Valiño, F.

49 pp. 9 figs. 10 Tablas 15 refs.

### **Abstract:**

The document describes the methodology used at CIEMAT in order to determine, by gamma spectrometry, the background levels of the radionuclide Cs-137 in soils of the Spanish peninsular territory. The work is a part of an extensive research project developed jointly by the University of the Basque Country (UPV-EHU) and the CIEMAT, entitled “*Content and migration of radiocaesium and radiostrontium in Spanish soils*”, which is funded by the Plan I+D of the Spanish Nuclear Security Council (CSN). The objective of the project is to establish the reference levels of man-made radionuclides in Spanish soils, with respect to which the evaluation of a possible posterior accidental release of radioactive material could be appraised. The activity concentration of the fission products Cs-137 has been determined in 34 soil cores extracted from representative Spanish soils type zones. This publication describes the experimental system employed, its calibration, the particular conditions applied to perform the measurements, as well as the experimental validation of the methodology. The activity profiles and inventories of the radioactive element so obtained are also presented. The estimation of the background Cs-137 reference levels, will provide a basis for later applications as the study of the spatial distribution in the region, the determination of the correlation between the deposited activity and the meteorological conditions, or the calculation of the specific migration parameters of the radioactive elements in Mediterranean conditions.



## ÍNDICE

<b>1. Introducción. Objetivo del trabajo</b>	<b>1</b>
<b>2. Red de muestreo. Estaciones correspondientes al CIEMAT</b>	<b>2</b>
<b>3. Ejecución del muestreo</b>	<b>4</b>
<b>4. Preparación de las muestras</b>	<b>5</b>
<b>5. Espectrometría gamma</b>	<b>6</b>
<b>5.1 Introducción</b>	<b>6</b>
<b>5.2 Descripción del equipo</b>	<b>8</b>
<b>5.2.1 Cristal semiconductor</b>	<b>9</b>
<b>5.2.2 Preamplificador y fuente de alta tensión</b>	<b>9</b>
<b>5.2.3 Amplificador</b>	<b>9</b>
<b>5.2.4 Convertidor Analógico Digital (ADC)</b>	<b>9</b>
<b>5.2.5 Blindaje del detector</b>	<b>10</b>
<b>5.2.6 Sistema criostático</b>	<b>11</b>
<b>5.3 Puesta a punto inicial del equipo</b>	<b>11</b>
<b>5.3.1 Calibración en energía</b>	<b>12</b>
<b>5.3.2 Resolución del sistema</b>	<b>13</b>
<b>5.3.3 Fondo ambiental</b>	<b>15</b>
<b>5.3.4 Límites críticos</b>	<b>16</b>
<b>5.4 Calibración en eficiencia del equipo</b>	<b>18</b>
<b>5.4.1 Determinación experimental de la eficiencia.</b>	
<b>Consideraciones generales</b>	<b>20</b>
<b>5.4.2 Preparación de los patrones</b>	<b>21</b>
<b>5.4.3 Medida de los patrones. Eficiencia del sistema</b>	<b>22</b>
<b>5.5 Medida de las muestras y análisis de los espectros gamma</b>	<b>23</b>
<b>5.5.1 Desarrollo de las medidas. Condiciones de medida</b>	<b>23</b>
<b>5.5.2 Emisiones y radioelementos detectados</b>	<b>24</b>
<b>5.5.3 Análisis de espectros: Determinación de la actividad en las muestras</b>	<b>25</b>
<b>5.6 Validación del procedimiento</b>	<b>27</b>
<b>6. Resultados</b>	<b>29</b>
<b>7. Conclusiones</b>	<b>33</b>
<b>8. Referencias</b>	<b>34</b>
<b>Anexo I. Especificaciones técnicas del espectrómetro gamma</b>	<b>35</b>
<b>Anexo II. Valores de actividad de Cs-137 en los suelos</b>	<b>39</b>



## 1. INTRODUCCIÓN. OBJETIVO DEL TRABAJO

En el caso eventual de una liberación de material radiactivo al medio ambiente, su detección debe realizarse con relación a los niveles de fondo. Por tanto, es imprescindible conocer tales niveles de referencia. Así mismo, los parámetros que gobiernan su transferencia entre los diferentes compartimentos de la biosfera deben ser establecidos en cada región específica, para asegurar una evaluación fiable del impacto ambiental.

Hasta la fecha, el conocimiento relativo a una caracterización radiológica de los distintos suelos del territorio español no ha permitido estimar la magnitud de un depósito de radionucleidos sobre el fondo existente, ni efectuar una evaluación cuantitativa del transporte de radionucleidos a través de los mismos. A tal fin, se ha desarrollado el proyecto de colaboración entre el CIEMAT/DMA y la UPV/EHU "*Contenido y migración de radioestroncio y radiocesio en suelos españoles*", financiado por el Plan de I+D del Consejo de Seguridad Nuclear. El proyecto plantea la caracterización del contenido radiactivo de origen artificial ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ) depositado en los suelos del territorio español, mediante el estudio de perfiles en zonas de suelos característicamente españoles, obteniéndose el inventario y los parámetros que gobiernan la migración y transferencia de estos radionucleidos en condiciones de sistema mediterráneo (muy poco estudiadas hasta el momento).

Como se describirá en este trabajo, la presente evaluación radiológica a nivel nacional ha requerido la recogida, tratamiento y análisis de un volumen de muestras relativamente elevado. La medida de las muestras por espectrometría gamma, efectuada para determinar la concentración de actividad del radioelemento Cs-137 en los suelos, se ha repartido entre ambos laboratorios participantes, UPV-EHU y CIEMAT.

El objeto de esta publicación consiste en la descripción de las medidas por espectrometría gamma de los suelos efectuadas por el CIEMAT. Por un lado, se detallará la puesta a punto del sistema de espectrometría empleado, poniendo especial énfasis en la calibración en eficiencia del detector de HPGe. Por otro, se expondrán los resultados obtenidos en las muestras analizadas, en forma de tablas y figuras que recojan los valores de actividad, inventario y perfiles de actividad determinados en los suelos estudiados.

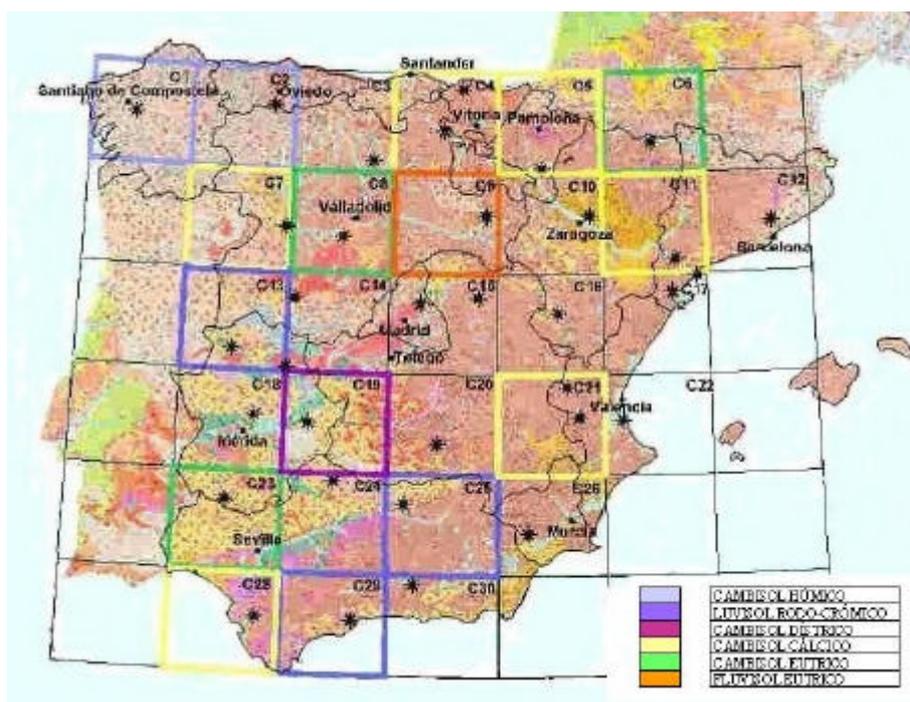
A continuación se describirá la red de muestro, la extracción de las muestras, y su preparación para la medida por espectrometría gamma. Seguidamente, se describirá con detalle la puesta a punto del sistema de espectrometría gamma y el desarrollo de las medidas, tras lo cual se mostrarán los resultados obtenidos. Finalmente, se exponen las conclusiones, se incluyen las referencias bibliográficas utilizadas, y por último, se insertan anexos con información complementaria del trabajo.

## **2. RED DE MUESTREO. ESTACIONES CORRESPONDIENTES AL CIEMAT**

El diseño y la realización del programa de muestreo requirieron un estudio previo exhaustivo de la distribución de suelos en la España peninsular. Se consultaron las siguientes fuentes de información: Base de datos de suelos junto con el índice de vulnerabilidad asociado a algunos puntos (1), Clasificación del suelo según la terminología de la FAO 1974 (2), Mapa de Suelos de la Comunidad Europea (3). Asimismo, se efectuó una búsqueda de puntos de muestreo caracterizados edafológicamente y no perturbados en los últimos 50 años, empleando el Sistema Español de Información de Suelos sobre Internet SEISnet (4), el catálogo de suelos de Extremadura (5) e información del Departamento de Edafología de la Estación Experimental Aula Dei (6). Estas fuentes describen la distribución espacial del tipo de suelo por comarcas y contienen una base de datos de perfiles de suelo peninsulares. Por otra parte, se realizó una recopilación de datos pluviométricos provenientes del Instituto Nacional de Meteorología y se estableció un banco de datos con información mensual en un total de 897 estaciones y diaria en un total de 876 estaciones.

Con esta información de base se ha diseñado la red de muestreo del proyecto. Se ha establecido una malla de 30 cuadrantes ( $\approx 150 \times 150$  km) en los que se han seleccionado una a una las estaciones de muestreo que reúnen las características necesarias de caracterización anteriormente descritas, escogiéndose suelos que se puedan considerar representativos de los tipos de suelo mayoritarios de la península. Se han seleccionado puntos de muestreo caracterizados edafológicamente, cuya distancia es relativamente pequeña (menor de 10 km) a una estación meteorológica operativa durante la segunda mitad del siglo XX, al objeto de contar con los datos de precipitación en la época en la que se ha producido la precipitación de los productos de fisión, debida a las pruebas atmosféricas de armamento nuclear efectuadas fundamentalmente en la década de los cincuenta y especialmente a principios de los sesenta. Adicionalmente, se han seleccionado puntos de muestreo en las zonas de influencia de las centrales nucleares españolas operativas.

La Figura 1 muestra la ubicación de los 34 puntos de muestreo seleccionados. La distribución espacial homogénea de los puntos de muestreo ha permitido una cobertura del 85% de los tipos de suelo mayoritarios españoles. En la Tabla 1 se exponen las estaciones de muestreo cuya medida por espectrometría gamma corresponde al CIEMAT. El reparto de estaciones entre los laboratorios de la UPV y CIEMAT se ha efectuado a modo de “damero”, de manera que las estaciones correspondientes a cada institución, y en particular las correspondientes al CIEMAT, están homogéneamente repartidas por todo el territorio peninsular español. De las 17 estaciones de muestreo correspondientes a esta última institución, objeto del presente trabajo, 8 de ellas son estaciones destinadas al estudio de perfiles de actividad, mientras que 9 son estaciones para la determinación del inventario, tal y como se detallará posteriormente.



**Figura 1.** Distribución de los puntos de muestreo.

ESTACIÓN	P / I	Fecha muestreo	Coordenadas UTM		HUSO	Altitud (m)
			X	Y		
LE 02	P	04/07/2005	740593	4770596	29	1455
GAROÑA 4	I	14/06/2005	483009	4734954	30	538
NA 05	P	13/06/2005	616074	4685209	30	357
ZA 07	P	05/07/2005	268658	4604174	30	730
SO 09	P	13/06/2005	541829	4617813	30	1028
B 12	I	08/11/2005	430051	4610525	31	245
CC 13	P	07/07/2005	705287	4431634	29	1312
SA 14	I	06/07/2005	279510	4504698	30	900
TRILLO 15	I	23/03/2006	529173	4504578	30	800
T 17	I	09/11/2005	288277	4521455	31	27
CC 18	I	24/04/2006	744711	4341944	29	363
V 21	P	05/04/2006	657364	4389958	30	1028
COFRENTES 21	I	06/04/2006	668103	4341159	30	343
CO 24	I	25/04/2006	334968	4252695	30	639
J 25	P	03/04/2006	432377	4220430	30	460
MA 29	P	26/04/2006	359875	4061446	30	92
GR 30	I	04/04/2006	434641	4112002	30	713

**Tabla 1.** Estaciones de muestreo cuya medida por espectrometría gamma ha correspondido al CIEMAT. La referencia P / I indica si en la estación se ha determinado el perfil de actividad (P) o únicamente el inventario (I). Se han incluido la fecha de muestreo, las coordenadas UTM y el huso asociado, así como la altitud del punto de muestreo respecto del nivel del mar.

### 3. EJECUCIÓN DEL MUESTREO

Con carácter previo al inicio de la ejecución del programa de muestreo, se efectuó un estudio detallado de la ubicación, accesos y usos del suelo de cada estación de muestreo utilizando para ello el SIGPAC (7) (Sistema de Información Geográfica de Parcelas Agrícolas). El sistema permite la visualización de los puntos geográficos a diferentes niveles de detalle, desde mapas regionales y locales hasta la ortofoto aérea, nivel en el que el sistema aporta información actualizada de uso de la parcela, caminos de acceso, y vías de agua, de gran utilidad en la planificación de la ruta de muestreo. Así mismo, se realizó una visita previa al muestreo, a los puntos seleccionados para optimizar los tiempos de ejecución a partir de una verificación *in situ* de los accesos, barreras y cambios en la utilización del suelo que se pudieran haber producido y se elaboraron los procedimientos detallados de muestreo.

El proceso de muestreo se ha efectuado de acuerdo con las recomendaciones contenidas en la norma ISO 18589 (8) sobre muestreo de suelos. La extracción de las muestras se ha realizado mediante la utilización de un penetrómetro de impacto provisto de una camisa interior -consistente en un cilindro de PVC- que optimiza la carga de personal y de tiempo de dedicación y, al utilizar el cilindro de PVC transparente como contenedor de la muestra, permite ver los horizontes del tipo suelo inmediatamente tras su extracción. Además, dispone de una embocadura especial para evitar las pérdidas en suelos arenosos. El sistema va instalado sobre una oruga que posibilita alcanzar zonas escarpadas y de difícil acceso con equipos mayores. Para cada punto de muestreo se eligen dos subpuntos distantes entre sí unos 30 cm, a los que se denomina A y B. Utilizando un cilindro de 6 cm de diámetro interior y 60 cm de longitud, en cada subpunto se realizan dos extracciones sucesivas, de modo que se alcanzan los 120 cm sin discontinuidades (se obtiene un núcleo superficial y otro profundo, denominados S y P respectivamente). La toma de muestras en dos subpuntos por cada estación permite aumentar la cantidad de muestra disponible y su representatividad.

Tras realizar la extracción de cada cilindro, se cierran ambos extremos con tapones de silicona y se comprueba que el proceso se ha desarrollado correctamente. En caso de no ser así (principalmente por pérdida de muestra y, en el caso de los cilindros superiores, también por derrumbamiento de la pared), se elige un punto de extracción alternativo. Los cuatro cilindros transparentes de PVC que contienen la muestra de suelo y que se obtienen durante la ejecución del muestreo, se etiquetan convenientemente y se congelan. Posteriormente se cortan en secciones de 3 cm, en el caso de estaciones de perfiles (P en la Tabla 1), mezclándose las secciones correspondientes a las dos extracciones realizadas en el mismo punto. En el caso de estaciones destinadas a la determinación del inventario (I en la Tabla 1) se ha establecido un segmento superficial de 30 cm y uno secundario de 20 cm, a partir del cual se han cortado consecutivos de 10 cm de espesor. Esta elección se ha efectuado al objeto de reducir el efecto de “disolución” de la baja actividad que se espera del radioelemento a medida que la profundidad del suelo es mayor.

Las muestras así obtenidas se procesan según el procedimiento que describe la norma UNE (9), tal y como se expone a continuación, quedando preparadas para la posterior medida por espectrometría gamma, así como la separación de radioestroncio y recuento de su emisión beta.

#### **4. PREPARACIÓN DE LAS MUESTRAS**

Las muestras obtenidas se han procesado según el procedimiento descrito en la norma UNE-73311-5 (9).

En primer lugar, se extrae cada subcilindro de la bolsa de plástico, separando cuidadosamente el suelo del cilindro de PVC. Las fracciones de suelo correspondientes a una misma profundidad, provenientes de las dos extracciones A y B en cada punto de muestreo, se mezclan para obtener una cantidad suficiente de muestra y poder alcanzar los límites de detección adecuados.

Tras la mezcla, se procede a disgregar la muestra manualmente sobre una bandeja de vidrio o metálica y se seca en estufa ( $\leq 40\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) o al aire libre durante 24 ó 48 horas, en función de su humedad [peso bruto]. Se coloca la muestra entre dos papeles satinados y, tras golpear con un mazo de goma hasta la completa disgregación, se hace pasar por un tamiz de 2 mm y se desecha la fracción que no lo atraviere (piedras y pequeñas raíces). A continuación se seca el polvo resultante a  $105 \pm 10\text{ }^{\circ}\text{C}$ , hasta obtener un peso constante (unas 24 horas) que se anota una vez alcanzada la temperatura ambiente [peso seco]. Por último, se muele en molino de bolas hasta que el tamaño mayoritario de grano sea 0.5 mm y se pesa el material obtenido [peso fino grueso]. El polvo así obtenido se guarda en la geometría adecuada, debidamente etiquetado y queda preparado para realizar posteriormente las medidas por espectrometría gamma y la separación de radioestroncio y recuento de su emisión beta.

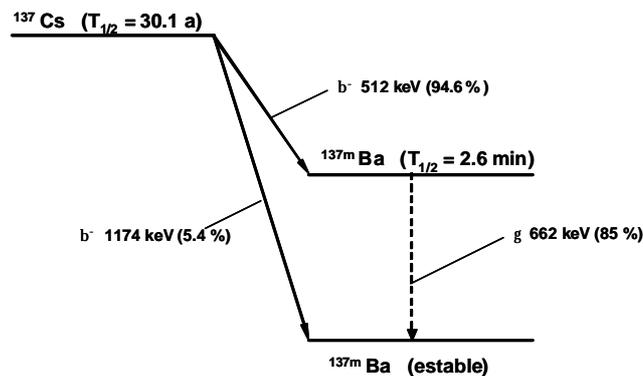
A continuación se describe la puesta a punto del detector HPGe, así como el desarrollo de las medidas de espectrometría gamma para la determinación del radioelemento Cs-137 en los suelos correspondientes al CIEMAT.

## 5. ESPECTROMETRÍA GAMMA

### 5.1 Introducción

La espectrometría gamma constituye una de las técnicas más poderosas para el estudio de la dispersión de radionúclidos en el medio ambiente. El objetivo general de esta técnica consiste en la determinación cuantitativa de los radioelementos emisores gamma presentes en las muestras objeto de estudio. Para ello, el sistema de espectrometría recoge el espectro de radiación de la muestra, que una vez comparado con el espectro de energías discreto de los radioelementos de referencia, permite la identificación de tales radioelementos presentes en la muestra.

La espectrometría gamma es la técnica experimental aconsejable para la medida de la concentración de actividad de Cs-137 en muestras de suelo. En efecto, a través de la detección del fotón de 662 keV, e intensidad  $Y=85\%$ , emitido por el Ba-137, (ver Figura 2), es posible determinar la actividad del radioelemento en las muestras.



**Figura 2.** Esquema de desintegración del Cs-137. El decaimiento se produce, con una intensidad 94.6 %, mediante emisión beta hacia el  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  (Bario metastable). Éste a su vez decae, con una semivida de 2.6 min., al  $^{137}\text{Ba}$  (Bario estable), mediante la emisión del fotón de 662 keV, con una intensidad del 90 % (el 10 % restante decae mediante conversión interna). Finalmente, el fotón emitido se produce con una intensidad  $Y=85\%$ , respecto de la actividad del Cs-137.

En esta sección se describen los elementos del sistema de espectrometría empleado, su calibración así como la realización de las medidas de las muestras de suelo.

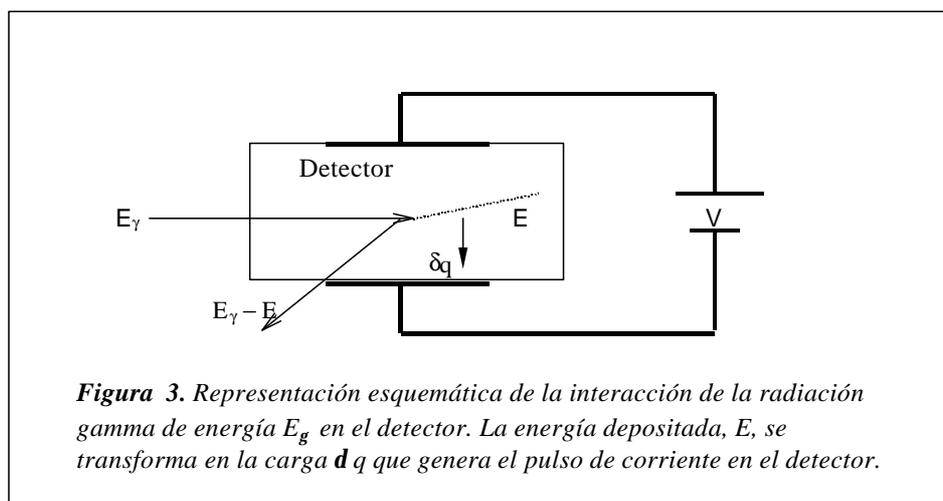
### 5.2 Descripción del equipo

A continuación, se describirá el sistema de espectrometría gamma con detector de germanio de alta pureza, DT7, instalado en el Laboratorio de Radiactividad Ambiental (LRA) del CIEMAT, empleado en la medida de los radioelementos emisores gamma (y en particular del Cs-137) presentes en las muestras de suelo. En el ANEXO I se ha incluido una copia de las especificaciones técnicas del detector.

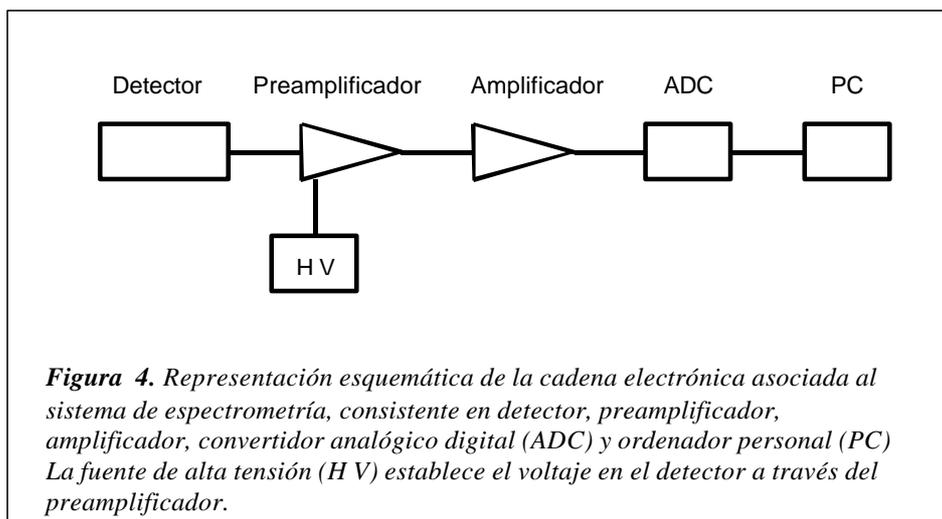
El sistema de espectrometría consta de un conjunto de dispositivos especialmente diseñados para la medida de fotones gamma en muestras con bajo nivel de actividad. El principal elemento del sistema de medida es el detector, consistente en un cristal semiconductor de germanio de alta pureza, sobre el que se aplica una diferencia de potencial elevada, a fin de establecer un intenso campo eléctrico. La radiación gamma de energía  $E_g$  procedente de la muestra interacciona con el detector (Figura 3) mediante los procesos característicos de altas energías: efecto fotoeléctrico, Compton o producción de pares. La energía  $E$  depositada por el fotón se transforma en portadores de carga electrón-hueco, que bajo la acción del campo eléctrico generan un pulso de corriente proporcional a dicha energía.

El detector está conectado a una cadena electrónica convencional (Figura 4) que amplifica la señal eléctrica, y en última instancia genera el espectro de radiación gamma. El preamplificador y el amplificador dan forma y amplifican linealmente el pulso eléctrico. El convertidor analógico digital (ADC) transforma la señal analógica en un dígito, denominado canal  $C$ , proporcional al voltaje máximo del pulso, y por tanto proporcional también a la energía  $E$  depositada por la radiación en el detector. La señal digital es procesada por un PC que genera el espectro gamma  $n(C)$ , consistente en la representación del número  $n$  de detecciones para cada canal  $C$ .

El espectro de una muestra que emite un conjunto de energías gamma consiste en un continuo, procedente fundamentalmente de las radiaciones que depositan su energía parcialmente mediante efectos Compton simple y múltiples, sobre el cual se sitúan los fotopicos, generados tras cesión total de la energía del fotón. La posición de un fotopico en un espectro es proporcional a la energía del fotón gamma que lo origina.



A continuación, se describirán los distintos elementos que constituyen nuestro sistema de espectrometría. Se pondrá especial énfasis en detallar aquellos aspectos esenciales, tanto de diseño como de funcionamiento, que permiten efectuar la medida de los radionúclidos gamma con el sistema de espectrometría.



### 5.2.1 Cristal semiconductor

El detector consiste en un cristal semiconductor de germanio hiperpuro (1 átomo de impureza por cada  $10^{12}$  átomos de Ge), modelo GX10022 de la marca CANBERRA. Se trata de un detector coaxial de 84 mm de diámetro y 71.5 mm de altura. La configuración de diodo p-i-n y el elevado campo eléctrico que se genera en la configuración coaxial del detector lo hacen idóneo para la espectrometría gamma.

El detector funciona enfriado a la temperatura de licuefacción del nitrógeno (77 K), a fin de minimizar las corrientes de pérdida que se generan a temperatura ambiente, que reducirían la resolución energética.

El voltaje de trabajo del detector es de 4500 V, siendo de 4000 V el voltaje de zona reducida, es decir, el voltaje que permite extender el campo eléctrico a la totalidad del volumen del detector.

El detector es sensible a fotones en el rango energético 40 keV-10 MeV. La relación entre el número de cuentas en el canal de fotopico para la emisión de 1332 keV ( $^{60}\text{Co}$ ) y el promedio del continuo Compton en el intervalo energético 1040-1096 keV, denominada razón Pico/Compton del detector, es 79.4. La eficiencia relativa a un detector NaI(Tl) de 7.62 cm x 7.62 cm es del 101.3 %, para el citado fotón de 1332 keV emitido por una muestra puntual situada a 25 cm del detector, y la resolución, expresada mediante la anchura a la mitad de altura del fotopico (FWHM) a dicha energía es de 2.04 keV.

### 5.2.2 Preamplificador y fuente de alta tensión

El detector de germanio de alta pureza está conectado a un preamplificador modelo 2002CSL de la marca CANBERRA. El preamplificador tiene como finalidad transformar el pulso de carga en un pulso de voltaje. Con objeto de minimizar la atenuación de tales pulsos en su recorrido desde el detector hasta el preamplificador, ambos dispositivos se instalan juntos, en el criostato. El enfriamiento del preamplificador disminuye su ruido electrónico, lo que contribuye a mejorar la resolución del sistema de espectrometría. Además, el preamplificador adapta la alta impedancia del detector con la baja impedancia del cable coaxial que comunica las señales con el resto de la cadena electrónica, a fin de evitar las reflexiones del pulso eléctrico.

El preamplificador incluye la fuente de voltaje, modelo 3106D de la marca CANBERRA, que se encarga de establecer el campo eléctrico en el interior del detector. Dicha fuente de alta tensión proporciona voltajes en el intervalo 0-5000 V, siendo el voltaje óptimo de operación en nuestro caso de 4500 V. Con objeto de evitar los daños que la corriente de pérdida produciría en el semiconductor a temperatura ambiente, la fuente de tensión incorpora un inhibidor de voltaje de forma que cuando el detector se calienta, debido a que se acaba el nitrógeno líquido, el voltaje se reduce a cero automáticamente.

### 5.2.3 Amplificador

Las señales del preamplificador van al amplificador, modelo 9615 de la marca CANBERRA, cuyas dos funciones son las de amplificar y dar forma conveniente al pulso eléctrico. El amplificador dispone de los siguientes dispositivos.

1. *Ajuste de la ganancia de amplificación G*. Se ha escogido la amplificación de forma que el espectro recoja el rango energético 0-2000 keV, suficiente para determinar las emisiones gamma ambientales.
2. *Eliminador de pulsos por apilamiento, P.U.R. (Pile Up Rejector)*. Es un dispositivo que no cuenta los pulsos que están claramente distorsionados como consecuencia del apilamiento.
3. *Tiempo de formación del pulso (Shaping time)*. El amplificador cuenta con un selector de tiempos de formación de pulso, "Shaping time", en el intervalo 0.5-12  $\mu$ s, habiéndose establecido el valor del "Shaping time" en 4  $\mu$ s.

### 5.2.4 Convertidor Analógico Digital (ADC)

El Convertidor analógico digital, ADC, es el dispositivo que determina la altura de los pulsos eléctricos procedentes del amplificador, transformando la señal analógica en un dígito, denominado canal, proporcional al voltaje máximo de dicha señal.

El sistema dispone de un ADC del tipo 9635 (CANBERRA), en el que se ha seleccionado una ganancia de conversión de 4096 canales. Este valor proporciona una anchura adecuada de los fotopicos del espectro, en el intervalo de 4 a 12 canales (dependiendo de la energía de la emisión).

El Convertidor Analógico Digital es un dispositivo relativamente lento, en comparación con el resto de los elementos de la cadena electrónica. Durante el tiempo en el cual el ADC procesa la señal, no puede llegar ningún otro pulso, de forma que el dispositivo introduce un tiempo muerto, que debe ser evaluado al objeto de corregirse las tasas de recuento. Para ello, el ADC dispone de un contador de tiempo vivo (*live time meter*), que determina la fracción del tiempo en la cual el equipo se encuentra midiendo. El cálculo de tasas de recuento se efectúa con el tiempo vivo, que en medidas de baja actividad coincide prácticamente con el tiempo real. El tiempo muerto aparece para tasas de recuento moderadas o altas, como ocurre en la medida de patrones radiactivos.

Una vez digitalizado el pulso, se incrementa en una unidad el número de cuentas almacenado en la dirección de memoria del PC, asociada al canal correspondiente. La representación del número de cuentas para cada canal constituye el espectro diferencial de altura de pulsos, o simplemente espectro gamma. Hemos empleado el programa informático *software* GENIE-2000, que trabaja en entorno WINDOWS, para visualizar y controlar el estado de la adquisición de los espectros.

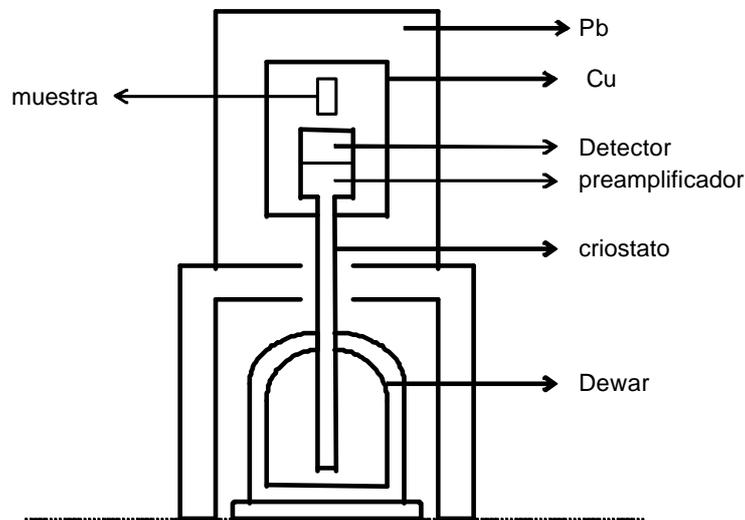
### 5.2.5 Blindaje del detector

Dado que el sistema se emplea para medidas de bajo nivel, es preciso minimizar la radiación detectada ajena a la muestra, lo que se conoce con el nombre de fondo en ausencia de muestra, o simplemente fondo. Esta radiación de fondo se debe principalmente a la interacción de los rayos cósmicos con la atmósfera, así como a la presencia de radionúclidos en el entorno del detector. El método más empleado para reducir la radiación de fondo consiste en situar el detector en un pequeño habitáculo, denominado blindaje, que reduzca la radiación detectada procedente del exterior. Este tipo de blindajes se denominan *blindajes pasivos*, dado que sólo se encargan de detener la radiación, frente a los *blindajes activos*, que eliminan el fondo utilizando detectores adicionales así como una electrónica especial, como es el caso del blindaje anti-Compton.

Con objeto de detener eficazmente la radiación gamma, los blindajes pasivos se construyen con materiales de alta densidad y elevado número atómico. Habitualmente se emplea hierro o plomo, con una antigüedad suficiente para no presentar trazas de elementos radiactivos artificiales o de  $^{210}\text{Pb}$  en el caso del plomo.

El sistema, dispone de un blindaje consistente en un receptáculo aproximadamente cúbico, cuyas paredes son de plomo, de un grosor de 10 cm (Figura 5). Se ha demostrado que para un detector de germanio de eficiencia relativa del 10 %, la tasa de recuento de fondo en el intervalo 50-3000 keV se reduce en dos órdenes de magnitud (Malm et al., 1984). El espesor de 10 cm es óptimo, dado que un espesor mayor generaría una componente de radiación inducida, como consecuencia de las emisiones gamma producto de la interacción de los rayos cósmicos con el blindaje.

La cara interior del blindaje se ha cubierto con una capa superficial de cobre, de 1 mm, para atenuar la radiación de fluorescencia de rayos X inducida en el plomo, cuya energía está comprendida en el intervalo 70-80 keV.



*Figura 5. Disposición espacial de muestra, detector, blindaje y sistema de enfriamiento.*

### 5.2.6 Sistema criostático

El enfriamiento del detector y del preamplificador se consigue incorporando ambos dispositivos en el criostato, que se encuentra en contacto directo con el nitrógeno líquido contenido en el Dewar (Figura 5), cuya capacidad es de 30 litros. El contenido de nitrógeno disminuye a medida que se evapora, debido al flujo de calor desde el exterior a temperatura ambiente, con lo cual, con una periodicidad semanal, es preciso reponer el volumen de nitrógeno. Para ello se dispone de otro tanque portátil de la misma capacidad, cuyo contenido se trasvasa al recipiente fijo mediante la inyección de nitrógeno gaseoso de gran pureza a presión.

### 5.3 Puesta a punto inicial del equipo

La determinación de los radioelementos presentes en las muestras requiere una rigurosa preparación del sistema de espectrometría. Es necesario conocer con precisión la respuesta que ofrece el detector en función de la energía de la radiación y el tipo de muestra medida. En nuestro sistema de espectrometría, han de determinarse las siguientes características operativas:

1. *Calibración en energía.* Consiste en obtener la relación entre la energía depositada y el canal del espectro, lo que permite determinar la energía de las emisiones detectadas, de donde se deducen los radioelementos presentes en las muestras.
2. *Resolución del detector.* Es la anchura de los fotopicos en el espectro. Permite conocer la capacidad del sistema para distinguir emisiones de distinta energía.
3. *Calibración en eficiencia.* Consiste en obtener la relación entre la tasa de emisión de la muestra y la tasa de detección del detector, cuyo conocimiento permite determinar la actividad de las muestras a partir del número de detecciones de fotopico.
4. *Fondo ambiental.* Ha de conocerse la detección de radiación ajena a la muestra, a fin de evaluar posibles interferencias y restarlas de la medida de la muestra.
5. *Límites de detección.* Ha de determinarse la mínima actividad que puede detectarse en las muestras con una determinada probabilidad, mediante este sistema .

A continuación, se expone la puesta a punto inicial del sistema de espectrometría, salvo el apartado 3, calibración en eficiencia, que se expondrá con detalle en un epígrafe posterior.

### 5.3.1 Calibración en energía

El diseño de los elementos del sistema de espectrometría gamma permite establecer la proporcionalidad entre la energía  $E$  depositada por la radiación en el detector y el correspondiente canal  $C$  asociado en el espectro. En detectores de semiconductor, la energía depositada por la radiación se transforma en una cantidad de portadores de carga, los pares electrón-hueco, igual a  $E/E_p$ , siendo  $E_p$  la energía media de formación del par. La posterior transformación de esta señal eléctrica se realiza mediante dispositivos que amplifican de forma proporcional la altura de dicho pulso, con lo cual, la relación que se establece entre el canal  $C$  y la energía  $E$  es prácticamente lineal. La separación de la proporcionalidad estricta se produce como consecuencia de la reducida no linealidad de las ganancias de conversión del preamplificador y del amplificador, así como de la propia no linealidad exacta de la ADC. La relación entre  $C$  y  $E$  puede expresarse mediante un polinomio de orden  $N$ , (generalmente  $N=5$  como máximo), es decir

$$C = \sum_{k=0}^{k=N} a_k E^k \quad (1)$$

En detectores de semiconductor con electrónica apropiada, y en concreto en detectores de germanio, la separación de la linealidad, expresada por los términos con  $k>1$ , suele ser del orden de una parte por mil. También es válida una expresión polinómica análoga para la energía en función del canal

$$E = \sum_{k=0}^{k=N} b_k C^k \quad (2)$$

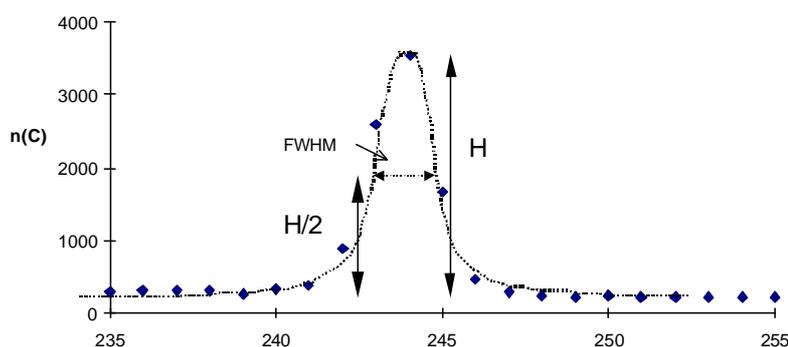
La función  $E(C)$ , que recibe el nombre de *calibración en energía* del detector, permite determinar la energía de las emisiones (fotopicos) detectadas, lo que hace posible identificar los radioelementos presentes en la muestra. La determinación de  $E(C)$  se efectúa midiendo una muestra patrón certificada que emite una serie de energías  $\{E_i\}$  cuyos fotopicos sean fácilmente distinguibles en el espectro, de forma que se puedan determinar los centroides  $\{C_i\}$  de tales fotopicos (centros de las gaussianas asociadas). La función de calibración se obtiene a través del ajuste de mínimos cuadrados de energías frente a canales utilizando la expresión (2).

La calibración en energía del detector cambia en el tiempo, fundamentalmente como consecuencia de la inestabilidad de los dispositivos electrónicos del sistema de espectrometría a plazo medio. Generalmente, la calibración en energía se hace inservible varias semanas o meses después de la medida del patrón, con lo cual, es preciso efectuar dicha calibración de forma periódica, y en particular justo después la subida de tensión del detector, tras un período sin funcionamiento. Siempre que sea posible, es aconsejable emplear una calibración interna, determinada a partir de fotopicos procedentes de emisiones ambientales que sean fácilmente identificables en el espectro de la medida de la muestra. En este sistema se han utilizado las emisiones de 238 keV ( $^{212}\text{Pb}$ ) y 1460 keV ( $^{40}\text{K}$ ), detectados en todas las muestras medidas, para determinar la calibración interna correspondiente a cada espectro. La alta linealidad de la relación energía-canal permite afirmar que los dos puntos son suficientes para determinar la calibración en energía.

### 5.3.2 Resolución del sistema

Los fotopicos del espectro gamma presentan una anchura que impone un límite del sistema de espectrometría para distinguir emisiones fotónicas de energías próximas. La resolución del detector se expresa mediante la anchura del fotopico a la mitad de la altura, FWHM, (*Full Width at Half Maximum*).

Es preciso conocer la resolución del sistema de espectrometría, a fin de evaluar su capacidad de distinción de diferentes emisiones gamma en el rango energético de estudio, 40-2000 keV. La resolución del detector se emplea, además, para establecer la región característica del espectro correspondiente a cada fotopico analizado, con objeto de determinar la tasa de recuento asociada a tales fotopicos, a fin de obtener la actividad de los radioelementos presentes en las muestras.



**Figura 6.** Determinación de la resolución, FWHM, mediante el ajuste del fotopico a una gaussiana.

Se ha determinado la resolución del detector mediante la medida de un patrón de suelo trazado con diferentes radioelementos, empleado para la calibración en eficiencia (detallada posteriormente), así como utilizando fotopicos procedentes de radioelementos ambientales contenidos en la propia muestra. La anchura de cada fotopico del espectro se obtiene mediante su ajuste a una función gaussiana,  $n(C)$ , según la forma

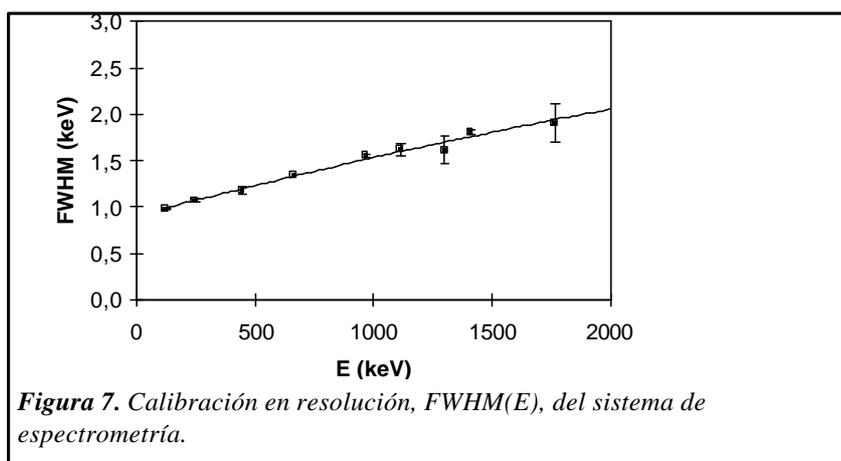
$$n(C) = B + H \cdot e^{-(C-C_0)^2/2s^2} \quad (3)$$

siendo  $B$ ,  $H$ ,  $C_0$ ,  $s$ , los parámetros ajustables en cada fotopico que representan, respectivamente, el fondo continuo, la altura, el centro, así como la desviación estándar  $\sigma$  de la gaussiana (Figura 6). La resolución FWHM se relaciona con  $s$  mediante la expresión  $FWHM = 2 \cdot \sqrt{2 \cdot \ln 2} \cdot s \approx 2.355 \cdot s$ .

En la Figura 7 se representa la resolución obtenida, apreciándose el crecimiento aproximadamente lineal que experimenta en el rango energético de estudio, desde 1 keV a bajas energías (50 keV), hasta 2 keV a altas energías (2000 keV). Se ha demostrado que la expresión teórica que proporciona la resolución de un sistema de espectrometría gamma con detector de semiconductor, en función de la energía  $E$  de la radiación, es de la forma

$$FWHM = \sqrt{A + B \cdot E + C \cdot E^2} \quad (4)$$

Los parámetros  $A$ ,  $B$ ,  $C$ , que dependen de las características concretas del cristal semiconductor y de la cadena electrónica del sistema, se determinan experimentalmente. El ajuste de los datos mediante la expresión (4) permite obtener la resolución en todo el rango energético, representada por la curva continua de la citada Figura 7. Los parámetros del ajuste son  $A=0.758$ ,  $B=1.62 \cdot 10^{-3} \text{ keV}^{-1}$ ,  $C=8.09 \cdot 10^{-8} \text{ keV}^{-2}$ , siendo la incertidumbre respecto de los datos experimentales inferior al 5%.



### 5.3.3 Fondo ambiental

#### *Origen del fondo*

Se denomina fondo ambiental, o simplemente fondo en espectrometría gamma, a la contribución a un espectro de la radiación que no procede de la muestra, con lo cual, el fondo ha de conocerse, con objeto de efectuar las correcciones necesarias para que el espectro obtenido represente la radiación emitida por la muestra. El fondo del sistema tiene una importancia significativa en los límites de detección y la precisión de las medidas de bajo nivel de actividad. A fin de optimizar la detección de radiación ambiental, es preciso minimizar la radiación de fondo que llega al sistema de espectrometría.

Las fuentes de fondo pueden englobarse dentro de las siguientes categorías:

1. Radiactividad del propio detector.
2. Radiactividad de los elementos del sistema de espectrometría próximos al detector.
3. Radiactividad de suelos y paredes del laboratorio.
4. Radiactividad del aire del laboratorio.
5. Componentes primaria y secundaria de la radiación cósmica.

La primera de estas contribuciones es despreciable en nuestro caso ya que, debido a la alta pureza de los cristales HPGe, la contaminación del propio detector es despreciable. La segunda se minimiza construyendo los elementos del sistema de espectrometría con materiales con bajo contenido en elementos radiactivos. En concreto, el blindaje, que constituye el dispositivo más cercano al detector, está libre de elementos radiactivos de periodo de semidesintegración corta como el radioelemento  $^{210}\text{Pb}$ .

La tercera componente del fondo del detector está asociada con la radiactividad contenida en los materiales de construcción del laboratorio, que consiste básicamente en radioelementos de las series del uranio y del torio, así como el radioisótopo  $^{40}\text{K}$ . La cuarta componente está constituida por los elementos radiactivos que se encuentran en el aire, entre los que destacan los isótopos del radón, así como por los radioelementos presentes en el polvo en suspensión. Por último, la quinta componente hace referencia a las radiaciones de origen cósmico que afectan directamente al detector, o que provocan estados excitados en los materiales próximos al detector, que se desexcitan mediante emisión gamma.

El blindaje pasivo de plomo y cobre empleado en nuestro caso reduce, en torno a dos órdenes de magnitud, las componentes del fondo debidas a las paredes y a la radiación cósmica, que representan la mayor parte del fondo del sistema de espectrometría.

#### *Medida del fondo del detector*

La medida del fondo permite identificar la contribución debida al fondo ambiental de las emisiones de la muestra. A fin de determinar correctamente las tasas de emisión de las muestras, de donde se obtienen las actividades de los radioelementos, es imprescindible sustraer las tasas de recuento de fondo. Además, como se comentó anteriormente, la adecuada caracterización del fondo determina el cálculo de los límites críticos y las incertidumbres estadísticas de las medidas.

Durante la realización de la medida de las muestras, se han recogido espectros del fondo, con una periodicidad estacional y un tiempo de recuento de 72 h. El espectro de fondo característico consiste en un continuo en el que se superponen diversas emisiones de radioelementos pertenecientes a las series del uranio y del torio, así como la emisión de 1460 keV del  $^{40}\text{K}$  y el fotón de aniquilación del positrón (511 keV). Las medidas periódicas han demostrado que el espectro de fondo se mantiene constante a lo largo del año, de forma que la incertidumbre en la tasa de recuento de las distintas emisiones es de carácter exclusivamente estadístico. En la Tabla 2 se recoge el valor de la tasa de recuento de distintos fotones característicos del fondo del sistema de espectrometría.

Radioelemento	Energía (keV)	Cuentas/ 1000 seg	Cadena
$^{226}\text{Ra} + ^{235}\text{U}$	186.0 + 185.7	8.0±0.4	$^{238}\text{U} + ^{238}\text{U}$
$^{212}\text{Pb}$	238.6	4.3±0.3	$^{232}\text{Th}$
$^{214}\text{Pb}$	295.2	1.1±0.2	$^{238}\text{U}$
$^{214}\text{Pb}$	351.9	1.7±0.2	$^{238}\text{U}$
$e^+ + ^{208}\text{Tl}$	511.0 + 510.7	14.1±0.3	$(e^+) + ^{232}\text{Th}$
$^{208}\text{Tl}$	583.0	1.66±0.17	$^{232}\text{Th}$
$^{214}\text{Bi}$	609.3	1.66±0.18	$^{238}\text{U}$
$^{212}\text{Bi}$	727.0	0.41±0.13	$^{232}\text{Th}$
$^{228}\text{Ac}$	911.1	0.52±0.13	$^{232}\text{Th}$
$^{214}\text{Bi}$	1120.3	0.80±0.11	$^{238}\text{U}$
$^{40}\text{K}$	1460.8	7.6±0.2	$(^{40}\text{K})$
$^{208}\text{Tl}$	1592.5	0.58±0.09	$^{232}\text{Th}$
$^{214}\text{Bi}$	1764.5	1.2±0.1	$^{238}\text{U}$

**Tabla 2.** Tasas de recuento de los fotones del fondo del sistema de espectrometría.

### 5.3.4 Límites críticos

Las determinaciones de radiactividad ambiental se realizan frecuentemente en unos niveles donde el radionucleido de interés no puede distinguirse de los niveles del fondo, y la incertidumbre relativa asociada con el resultado tiende a aumentar hasta un punto en que el intervalo de incertidumbre incluye el valor cero; región asociada con el denominado límite de detección para un determinado método. Por tanto, para obtener resultados de actividad con una fiabilidad adecuada al fin del estudio, es necesario tener muy bien definida esta zona.

En primer lugar se debe establecer la decisión de detección (Umbral de Decisión (ISO-11929) o Límite Crítico (Currie, 1968)), es decir ¿la muestra contiene una cantidad positiva del radionucleido?). La decisión de detección implica una elección entre dos hipótesis respecto a la presencia del radionucleido en la muestra de análisis con una probabilidad de error determinada; la hipótesis nula (la muestra no contiene el radionucleido) y la hipótesis alternativa (la muestra si contiene el radionucleido); en principio la hipótesis nula se asume como verdadera a no ser que exista evidencia estadística suficiente que asegure lo contrario.

Para la determinación del Umbral de Decisión y el Límite de Detección se debe evaluar la incertidumbre típica de la magnitud a medir (concentración de actividad), de acuerdo con las recomendaciones establecidas en la guía ISO GUM (12). Así mismo, se debe especificar la probabilidad **a** del error de tipo I, la probabilidad **b** del error de tipo II, y la probabilidad  $1-g$  del intervalo de confianza. ISO recomienda elegir **a = b** y un valor 0,05 para **a**, **b**, y **g**. Así,  $k_{1-a} = k_{1-b} = 1,65$  y  $k_{1-g/2} = 1,96$ .

El Umbral de Decisión, ( $y^*$ ). Es un número de cuentas, determinado "a priori", que permite decidir, con una determinada probabilidad, si el resultado de una medida concreta es asignable al fondo o a una actividad real.  $y^*$  permite por tanto establecer si el resultado de una medida es estadísticamente significativo, es decir si no es debido al fondo.

Se calcula mediante la expresión:

$$y^* = k_{1-a} \pi(0) \quad (5)$$

Si el resultado obtenido,  $x$ , es menor que el Umbral de Decisión  $x^*$ ,  $x < x^*$ , se decide que el radionucleido no está presente, con una probabilidad de cometer un error de tipo I dada por **a**.

La definición del Límite de Detección ( $y^\#$ ) dada por ISO, es el menor valor verdadero del mensurando que puede detectarse mediante el procedimiento de medida usado. Está por encima del umbral de decisión  $y^*$ , de modo que la probabilidad del error de tipo II no supera **b**. El límite de detección  $y^\#$ , se obtiene como la solución menor de la ecuación

$$y^\# = y^* + k_{1-b} \cdot \tilde{u}(y^\#) \quad (6)$$

La capacidad de detección de un procedimiento de medida (Limite de Detección) es una de las características más importantes para evaluar la adecuación de un método de análisis para el fin propuesto, ya que especifica el valor verdadero mínimo del mensurando que puede ser detectado con una probabilidad de error, usando ese procedimiento.

El Limite de detección debe ser comparado frente al *Valor Guía* ( $V_g$ ) establecido para la magnitud objeto de medida, como consecuencia de requisitos exigidos al procedimiento de medida debido a razones científicas, legales u otras. En el caso de este trabajo el Valor Guía se ha establecido = 0,5 Bq/kg

En el caso del sistema empleado para este trabajo, el cálculo de los Límites Críticos se ha realizado mediante el programa GENIE de análisis espectral, que utiliza la nomenclatura de Currie, quedando en consecuencia las siguientes expresiones:

Para el Umbral de decisión (Límite crítico)

$$L_C = k_a \mathbf{S}_{D=0} = k_a \sqrt{C + \mathbf{S}_C^2 + I + \mathbf{S}_I^2} \quad (7)$$

Donde  $D$  es el número de detecciones que han sido emitidos por la muestra (señal real),  $C$  e  $I$  son, respectivamente, las contribuciones del continuo espectral y de la interferencia del fondo ambiental en el citado fotopico, y  $\mathbf{S}_C$  y  $\mathbf{S}_I$ , sus respectivas incertidumbres.

Y para el Límite de Detección:

$$L_D = k^2 + 2L_C = 1.65^2 + 2L_C \quad (8)$$

Ecuación simplificada a la que se llega admitiendo que la función de probabilidad que describe la incertidumbre ( $u(y^\#)$  o  $\mathbf{S}(Ld)$  Curries's) es una función normal tipificada y en tal caso  $Ld$  puede escribirse solo en función de parámetros del fondo o blanco. Y con las siguientes simplificaciones:

- Las contribuciones de incertidumbre son “despreciables” excepto el recuento
- Las probabilidades  $\mathbf{a} = \mathbf{b} = 0,05$
- El tiempo de medida de la muestra es igual al del fondo

Por tanto la expresión del Límite de Detección, en unidades de actividad, sería:

$$LD (Bq/kg) = L_D \frac{e^{\frac{T \ln(2)}{T_{1/2}}}}{\mathbf{e} Y t m} \quad (9)$$

donde  $T$  es el tiempo transcurrido desde la recogida de la muestra hasta su medida,  $T_{1/2}$  la semivida del radioelemento,  $t$  el tiempo de medida,  $Y$  la intensidad de la emisión estudiada y  $m$  la masa de la muestra.

#### 5.4 Calibración en eficiencia del equipo

La determinación cuantitativa de los radioelementos presentes en las muestras requiere el conocimiento de la eficiencia del sistema,  $\mathbf{e}$ , que mide la relación entre la tasa de recuento del detector y la tasa de emisión de la muestra, para cada energía gamma. La eficiencia depende de una gran cantidad de factores relacionados con el fenómeno de la detección de la radiación, como la energía, la composición y geometría de la muestra y del detector, así como su posición relativa, y la presencia de materiales entre ambos. Es necesario, por tanto, obtener la *calibración en eficiencia* del sistema muestra detector, es decir, determinar  $\mathbf{e}$  en función de todos los parámetros variables de los que depende dicha eficiencia.

Dado que la finalidad de la espectrometría gamma es el análisis de las muestras a través de la detección de las distintas emisiones, es preciso conocer la dependencia  $e(E)$  en el rango energético de interés,  $E=46-2000$  keV., fundamentalmente en la eficiencia para la energía  $E=662$  keV (Cs-137), se ha determinado la eficiencia en todo el intervalo energético, a fin de contar con una calibración en eficiencia del detector válida para la detección genérica de radioelementos emisores gamma en los suelos bajo estudio.

La *eficiencia e* del sistema muestra-detector se define como la relación entre la tasa de recuento y la tasa de emisión de la radiación gamma de determinada energía. Si  $N$  es el número de emisiones y  $D$  el número correspondiente de detecciones, por definición

$$e = \frac{D}{N} \quad (10)$$

es decir, la eficiencia es la fracción de fotones detectados, o lo que es lo mismo, la probabilidad de detección para cada fotón individual. El presente trabajo se refiere a procesos de detección en los que el fotón deposita toda su energía en el detector, es decir procesos de absorción total que contribuyen al fotopico del espectro. La eficiencia en este caso se denomina *eficiencia de fotopico*, o simplemente *eficiencia* (en caso de considerarse cualquier tipo de detección, tanto en el continuo espectral asociado a la emisión como en su fotopico, la eficiencia se denomina *eficiencia total*, que queda fuera del alcance del presente trabajo).

El conocimiento de la eficiencia es imprescindible para determinar la actividad de las muestras. El número de fotones  $N$  de determinada energía emitidos durante un tiempo  $t$ , por un radionúclido presente en la muestra con actividad  $A$  es  $N = AYt$ , donde  $Y$  es la intensidad asociada a la emisión considerada. Utilizando la definición de eficiencia se tiene

$$A = \frac{D}{eYt} = \frac{r}{eY} \quad (11)$$

expresión que permite determinar la actividad de la muestra a través del recuento del número  $D$  de detecciones, o equivalentemente, a través de la tasa de recuento  $r = D/t$ . La eficiencia que se utiliza para este fin es la de fotopico, dado que es relativamente sencillo deducir del espectro el número de detecciones de absorción total, que consiste en el área del fotopico correspondiente, a la que sustraemos el número de detecciones interferentes que provienen del fondo, en caso de que exista.

En medidas ambientales, como es el caso de las muestras de estudio, la concentración de actividad de las muestras es baja, de manera que es preciso conseguir la máxima eficiencia posible. En este trabajo se emplea un detector de geometría coaxial de manera que, con objeto de conseguir la mayor eficiencia posible, ha de escogerse cuidadosamente la forma y posición de la muestra respecto de aquel. Es preciso maximizar el ángulo sólido medio con que la muestra ve al detector, minimizando la distancia entre ambos. Esta es la finalidad de los recipientes Marinelli, cuya geometría envolvente reduce la distancia promedio muestra-detector. Con ello, además se minimiza la atenuación de la radiación en el interior de la muestra, lo que contribuye a aumentar la eficiencia. Sin embargo, en el caso de estudio, no se dispone de la cantidad de muestra necesaria para utilizar este tipo de recipientes, de manera que se han empleado recipientes cilíndricos, situados a la mínima distancia posible del detector.

La determinación de la eficiencia, para las condiciones particulares de medida (detector, geometría de las muestras, muestras de suelo) se ha efectuado de forma experimental, mediante la medida de patrones de suelo preparados *ex professo*. A continuación se describen las consideraciones generales que han de tenerse en cuenta en la determinación experimental de la eficiencia, así como el protocolo empleado para la preparación de los patrones de suelo, y su particularización para las condiciones concretas del presente estudio. Finalmente se expone la eficiencia obtenida, válida para la medida, con el detector empleado, de las muestras de suelo de geometría cilíndrica, en todo el rango energético de interés, y en particular para la determinación de Cs-137 (E = 662 keV).

#### 5.4.1 Determinación experimental de la eficiencia. Consideraciones generales

La determinación experimental de la eficiencia se efectúa a través de la medida de un patrón que contiene uno o varios radioelementos emisores gamma de actividad conocida. Dado que el número de emisiones de un fotón de intensidad  $Y$ , procedentes de un radioisótopo presente en el patrón con actividad  $A$ , durante el tiempo de medida  $t$  es  $N=AYt$ , teniendo en cuenta la definición (10), la eficiencia puede determinarse mediante

$$e = \frac{D}{AYt} \quad (12)$$

donde el número de detecciones  $D$  del fotón considerado se extrae del espectro de la medida. Dicha expresión proporciona la eficiencia a la energía de la emisión concreta, siendo válida para muestras con la geometría y composición del patrón medido.

La información relativa al trazador radiactivo queda reflejada en su certificado de calibración, donde, además de la actividad de los radioelementos así como la incertidumbre asociada, se especifican las energías e intensidades de las emisiones. En dicho certificado también se describe el método empleado para la fabricación y determinación de la actividad de la solución.

La determinación de la eficiencia, para las condiciones particulares de medida (detector, geometría de las muestras, muestras de suelo) se ha efectuado de forma experimental, mediante la medida de patrones de suelo preparados *ex profeso*. A continuación se describe la preparación de los patrones de suelo y se expone la eficiencia obtenida, válida para la medida, con el detector empleado, de las muestras de suelo de geometría cilíndrica, en todo el rango energético de interés, y en particular para la determinación de Cs-137 (E = 662 keV).

#### 5.4.2 Preparación de los patrones

Se ha desarrollado y aplicado el siguiente procedimiento para la preparación de patrones de suelo:

**Tipo de muestra.** Se ha empleado un suelo del tipo más abundante en la península (Cambisol Dístrico) como matriz para preparar los patrones. Al objeto de eliminar posibles interferencias del Cs-137 y otros radioelementos existentes en la muestra, procedentes del fallout atmosférico, con la solución certificada que se añadirá, se ha seleccionado una muestra relativamente profunda (profundidad de 50 cm) de un testigo extraído en un estudio previo. Una vez seco, molido y tamizado (0.5 mm) se preparan 2 muestras utilizando la geometría medida gamma (ver a continuación). Se miden las muestras, se determina el contenido de  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{241}\text{Am}$ . Este último paso permite demostrar que efectivamente el suelo escogido no presenta actividad (por encima de los límites de detección) de estos radioelementos, salvo una pequeña cantidad de Pb-210, debido a su presencia en la serie del U-238, a partir de la desintegración consecutiva del Ra-226 y del Rn-222. La tasa de recuento de Pb-210 encontrada se restará a la posterior tasa de recuento del patrón, a fin de corregir la interferencia (se seleccionará la actividad del trazador de manera que la interferencia sea inferior al 1 %).

**Geometría.** Cilíndrica plana de medida de las muestras: Diámetro 7.3 cm, altura 2.6 cm ( $V = 108.8 \text{ cm}^3$ ).

**Número de patrones.** Se han preparado 2 patrones idénticos, al objeto de verificar la homogeneidad del trazador, asegurar que no hay pérdida de actividad del mismo y efectuar un promedio de la actividad que proporcione un resultado más fiable.

**Solución Patrón Inicial.** Se parte de una solución patrón conteniendo actividades conocidas (certificadas) de los radioelementos de interés, que cubran el rango energético objeto de calibración. El volumen total de la solución, o soluciones, a verter en el suelo debe ser como máximo de 2 ml, ya que ésta es la cantidad máxima que el suelo es capaz de absorber sin correr el riesgo de filtrado de la solución al fondo del recipiente. Los radioelementos escogidos, expuestos en la Tabla 3, cubren el rango energético  $E=46.5$ - $1332 \text{ keV}$ . Estas soluciones radiactivas han sido preparadas y suministradas por el Laboratorio de Metrología de las Radiaciones Ionizantes (LMRI) del CIEMAT. En concreto, los radioelementos  $^{210}\text{Pb}$  y  $^{241}\text{Am}$  han sido suministrados en una solución de ácido nítrico, mientras que radioelementos  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{60}\text{Co}$  y  $^{137}\text{Cs}$  se han suministrado en una solución de ácido clorhídrico. En la tabla se expone la actividad A por cada ml de solución (nítrico o clorhídrico), de acuerdo con el certificado suministrado por el laboratorio de metrología. El valor de dicha actividad se escogió (aproximadamente) como la mínima posible que permitiese obtener la eficiencia con una incertidumbre de recuento despreciable, para un tiempo de medida de 1 día. A cada una de las 2 muestras de suelo se le añadió 1 ml de solución trazador nítrica y 1 ml de solución trazador clorhídrica (2 ml de solución total por cada muestra de suelo), siguiéndose las indicaciones expuestas en el apartado anterior para la preparación de los 2 patrones.

Radioelemento	T(1/2) años	E (keV)	Intensidad	A (Bq/ml)	Medio
<b>Pb210</b>	22,26	46,5	0,0405	456	HNO3
<b>Am-241</b>	432	59,5	0,359	53,1	HNO3
<b>Cs137</b>	30,17	661,6	0,8512	43,7	HCl
<b>Co-60</b>	5,271	1173	1	101,1	HCl
<b>Co-60</b>	5,271	1332	1	101,1	HCl
<b>Na-22</b>	2,6	1274	0,9994	434,1	HCl

**Tabla 3.** Radioelementos, periodo de semidesintegración, energía e intensidad de las emisiones gamma seleccionadas. La actividad de cada radioelemento está referida a la fecha de preparación, 26/01/2006. La incertidumbre relativa de la actividad ( $u(A)/A$ ) es del 1%. Los radioelementos Pb-210 y Am-241 están contenidos en una solución de ácido nítrico, mientras que el resto de los radioelementos se han suministrado en una solución de ácido clorhídrico.

#### 5.4.3 Medida de los patrones. Eficiencia del sistema

Se ha efectuado la medida de los patrones con el detector, al objeto de determinar la eficiencia de las muestras de suelo en geometría cilíndrica. El tiempo de medida seleccionado ha sido de 24 h, suficiente para reducir las incertidumbres estadísticas por debajo del 0.5% en todas las emisiones consideradas. En la Tabla 4 se expone la eficiencia obtenida correspondiente a cada patrón, para las energías consideradas, así como la incertidumbre asociada. La diferencia entre ambas eficiencias es inferior al 5 % para todas las energías, lo cual demuestra que ambos patrones se han preparado correctamente, y en particular que no ha habido pérdida del trazador, y que se ha conseguido la homogeneización del mismo en el suelo matriz. Finalmente, se ha determinado un único valor de la eficiencia, así como su incertidumbre, para cada energía, promediando los valores de los dos patrones.

E (keV)	Radionucleido	$e_1$ (%)	$u(e_1)$	$e_2$ (%)	$u(e_2)$	$e$ (%)	$u(e)$
46,5	<sup>210</sup> Pb	12,02	0,36	12,87	0,39	12,45	0,62
59,5	<sup>241</sup> Am	13,61	0,41	14,47	0,43	14,04	0,70
661,6	<sup>137</sup> Cs	5,31	0,16	5,44	0,16	5,38	0,27
1173	<sup>60</sup> Co	3,05	0,09	3,11	0,09	3,08	0,15
1274	<sup>22</sup> Na	2,45	0,07	2,45	0,07	2,45	0,12
1332	<sup>60</sup> Co	2,77	0,08	2,83	0,09	2,80	0,14

**Tabla 4.** Eficiencia  $e_1$  y  $e_2$  de los patrones 1 y 2 respectivamente, así como la eficiencia final  $e$ , para la medida de suelos en geometría cilíndrica plana (diámetro  $\times$  altura = 7.3  $\times$  2.6 cm) con el detector empleado.

Se ha efectuado un ajuste de los datos de eficiencia, al objeto de obtener la curva  $\epsilon(E)$  válida en todo el rango energético, mediante la expresión

$$\ln e = \sum_{k=0}^{k=3} a_k (\ln(E))^k \quad (13)$$

siendo E la energía gamma en keV, y  $a_k$  los parámetros del ajuste. Con esta expresión se consigue generalmente una incertidumbre por debajo del 4 %, en el rango energético de interés. La curva de eficiencia sólo se utilizará en caso de emplearse el detector para la medida de radioelementos distintos a los utilizados para determinar la propia eficiencia, expuestos en la Tabla 4. En caso de medirse alguno de los radioelementos contenidos en el patrón, se empleará el valor expuesto en la tabla eficiencia, ya que este valor es directamente experimental y (al no contener la incertidumbre asociada al propio ajuste) más preciso. Por tanto, en el caso de la medida de Cs-137 en las muestras de suelo, se empleará  $\epsilon(662 \text{ keV}) = 5,38 \%$  ,  $u(\epsilon) = 0.27\%$ .

La eficiencia determinada en este apartado es válida en principio para muestras con la geometría, composición y densidad del patrón medido, siendo aplicable en el rango de energía considerado.

## **5.5 Medida de las muestras y análisis de los espectros gamma**

### **5.5.1 Desarrollo de las medidas: Condiciones de medida.**

La determinación de la actividad de las muestras ha requerido, como se ha demostrado previamente, el empleo de una función eficiencia dependiente de la disposición geométrica de medida. Por tanto, es fundamental controlar la geometría de las muestras y conocer la geometría del detector, así como mantener la misma posición relativa de muestra y detector en todas las medidas.

La medida de las muestras de suelo se ha efectuado en los recipientes de geometría cilíndrica, de 7.3 cm de diámetro y 2.6 cm de altura. La posición de las muestras con respecto al detector es coaxial, situándose la cara inferior de las muestras a la mínima distancia posible de la cara superior del detector. Debido a la reducida cantidad de suelo medido así como a su baja actividad específica, la proximidad de muestra y detector es imprescindible, al objeto de conseguir la máxima eficiencia de recuento, y por tanto mejorar los límites de detección así como la incertidumbre estadística en la determinación de la actividad de las muestras.

Con objeto de obtener una estadística de recuento adecuada, el tiempo de medida de las muestras ha sido de 24 horas. No obstante, en algunas medidas el tiempo de recuento ha sido superior, de 48 horas o más, a fin de mejorar la incertidumbre estadística en caso de muestras que presentan una actividad especialmente baja (niveles más profundos de los suelos).

El Límite de Detección del sistema, para el radioelemento Cs-137, con un tiempo de medida de 24 h, es de 0.35 Bq/kg. Dado que el Valor Guía establecido en el proyecto como mínimo aceptable (*Guideline Value*, ISO 11929-7) es de 0.5 Bq/kg, es posible afirmar que la metodología de medida aplicada es adecuada. Además, dado que en algunos casos el tiempo de medida se ha aumentado, a fin de mejorar la estadística de recuento cuando la actividad es especialmente baja, se han obtenido límites de detección inferiores, llegándose a alcanzar valores alrededor de 0.1 Bq/kg, para tiempos de medida de 5 días.

### 5.5.2 Emisiones y radioelementos detectados

Los espectros gamma de las muestras de suelos medidas presentan una amplia variedad de emisiones gamma. En la Tabla 5 se recogen, en orden energético, las principales emisiones detectadas en las muestras de suelo, así como los radioelementos que los emiten. En la Tabla 6 se recoge un resumen de todos los radioelementos emisores gamma detectados en las muestras de suelo.

Los radioelementos aislados,  $^{40}\text{K}$  y  $^{137}\text{Cs}$ , emiten sólo una energía gamma, 1460.8 y 661.6 keV respectivamente. Los radioelementos pertenecientes a las series radiactivas emiten en general más de una energía gamma, por ejemplo, el  $^{228}\text{Ac}$ , de la serie del torio, emite fotones gamma de energías 338.5, 911.1 y 968.9 keV, entre otros muchos.

Energía (keV)	Intensidad (%)	Radioelemento	Serie
46.5	4.05	$^{210}\text{Pb}$	Uranio
74.8	9.6	$^{212}\text{Pb}$	Torio
77.1	17.5	$^{212}\text{Pb}$	Torio
185.7+186	54.0 + 3.6	$^{235}\text{U} + ^{226}\text{Ra}$	Actinio + Uranio
238.6	45	$^{212}\text{Pb}$	Torio
241.0 + 241.9	45 + 7.3	$^{224}\text{Ra} + ^{214}\text{Pb}$	Torio + Uranio
295.2	18.7	$^{214}\text{Pb}$	Uranio
300.6	3.4	$^{212}\text{Pb}$	Torio
338.5	12.3	$^{228}\text{Ac}$	Torio
352.0	37.1	$^{214}\text{Pb}$	Uranio
583.1	30	$^{208}\text{Tl}$	Torio
609.3	46	$^{214}\text{Bi}$	Uranio
661.6	85.2	$^{137}\text{Cs}$	---
727.2	7	$^{212}\text{Bi}$	Torio
860.1	4.7	$^{208}\text{Tl}$	Torio
911.1	29	$^{228}\text{Ac}$	Torio
968.9	17.5	$^{228}\text{Ac}$	Torio
1001	0.6	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	Uranio
1120.4	15.2	$^{214}\text{Bi}$	Uranio
1460.8	10.7	$^{40}\text{K}$	---
1620.6	1.8	$^{212}\text{Bi}$	Torio
1764.7	15.4	$^{214}\text{Bi}$	Uranio

**Tabla 5.** Principales emisiones gamma detectadas en los suelos.

Radioelementos	Serie	Carácter
$^{234m}\text{Pa}$ $^{226}\text{Ra}$ $^{214}\text{Pb}$ $^{214}\text{Bi}$ $^{210}\text{Pb}$	Uranio	Natural
$^{228}\text{Ac}$ $^{212}\text{Pb}$ $^{212}\text{Bi}$ $^{208}\text{Tl}$	Torio	Natural
$^{137}\text{Cs}$ $^{40}\text{K}$	--- ---	Artificial Natural

**Tabla 6.** Radioelementos emisores gamma detectados en los suelos

### 5.5.3 Análisis de espectros: Determinación de la actividad en las muestras.

La determinación de la actividad de las muestras se ha efectuado mediante el programa de análisis de espectros *Gamma Acquisition and Analysis*, versión 2.1, perteneciente al paquete informático GENIE 2000. El análisis de los espectros se efectúa ejecutando una secuencia de análisis programada previamente, que consta de una serie de pasos consecutivos, en concreto:

1. Localización de picos.
2. Determinación de áreas.
3. Corrección de fondo.
4. Corrección por eficiencia.
5. Cálculo de actividades, incertidumbres y límites de detección.
6. Generación del informe.

Todos y cada una de estos pasos han de programarse adecuadamente, al objeto de efectuar un análisis correcto de los espectros. En particular, la localización de los picos se ha efectuado mediante la opción de búsqueda por librería. Mediante el programa *Nuclide library Editor*, también perteneciente al paquete GENIE 2000, se ha editado una librería que incluye el radioelemento Cs-137, además de otros que serán relevantes en estudios posteriores sobre los suelos (K-40, Bi-214, Pb-214, Pb-210, Am-241). La librería contiene los datos de energías e intensidades de emisión, así como el periodo de semidesintegración de los radionúclidos mencionados. Durante la ejecución de este paso de la secuencia, *Localización de picos*, el programa emplea la calibración en energía y resolución para ubicar los fotopicos en el espectro.

Una vez localizados, se ejecuta el segundo paso, consistente en la determinación de las áreas de fotopico. Se ha seleccionado para este paso el ajuste a una función gaussiana con una “cola” de baja energía. Se ha introducido además una opción específica para analizar el fotopico de 662 keV del Cs-137, debido a su proximidad al fotopico de 665 keV, e intensidad 1.57 %, procedente del Bi-214 presente en los suelos. A pesar de la baja intensidad de esta emisión, y por tanto su exigua presencia en el espectro, se ha comprobado su existencia en las medidas efectuadas, presentando interferencia con el fotopico de Cs-137. Esta interferencia es especialmente importante cuando la actividad de Cs-137 es baja, y el correspondiente área de fotopico es reducida, siendo comparable a la que presenta el fotopico interferente mencionado de 665 keV. Para obtener correctamente el área de fotopico de 662 keV se ha empleado un subprograma del paquete GENIE 2000, denominado *Interactive Peak Fit*, que permite la deconvolución de ambos picos,

El tercer paso de la secuencia de análisis consiste en la sustracción del fondo ambiental. El programa acude a la medida de fondo ambiental previamente efectuada, determina las tasas de recuento de fondo en los fotopicos seleccionados en la librería, y determina finalmente la tasa de recuento real asociada a la medida, restando a la medida las tasas de recuento del fondo. En el caso del fotopico de 662 keV, no hay que efectuar sustracción de fondo, dado que este fotopico no aparece en la medida del fondo ambiental.

El cuarto paso permite seleccionar el método de ajuste de la eficiencia de recuento. Dicha eficiencia está asociada al espectro de la medida, habiéndose “cargado” al espectro previamente a la ejecución de la autosecuencia, en la introducción inicial de datos asociados al espectro, mediante el comando denominado *sample info*. La forma en la que la eficiencia está asociada al espectro consiste en una tabla de energías, con la eficiencia correspondiente e incertidumbre. El paso mencionado de la autosecuencia selecciona la forma funcional de ajuste de tales datos, al objeto de obtener la curva continua de eficiencia en función de la energía. Existen diversas posibilidades y combinaciones de ajuste, habiéndose seleccionado la relación lineal entre el logaritmo de la eficiencia y la energía, descrita en el apartado anterior. Además, se ha optado por la opción de emplear para la energía 662 keV del Cs-137 la eficiencia “no ajustada”, es decir, su valor puntual contenido en la tabla (determinado directamente de forma experimental), habiéndose comprobado que proporciona los mejores resultados posibles en la detección del citado radioelemento.

En el penúltimo paso de la secuencia de análisis el programa determina la actividad, incertidumbre y el límite de detección, para cada radioelemento considerado. Para ello, emplea las tasas de recuento y eficiencias determinadas en los pasos previos, el tiempo de medida, así como la *masa* de la muestra y la *fecha* a la que ha de referirse la actividad (información insertada previamente en el espectro mediante el comando denominado *sample info*). El programa efectúa el cálculo de la actividad mediante la expresión (11), la incertidumbre combinada en A mediante aplicación de la ley de propagación de incertidumbres las distintas componentes (ISO GUM 1995) y el límite de detección mediante la expresión (9) (ISO 11929)

Finalmente, el último paso de la secuencia genera el informe del análisis, consistente en un archivo de texto, que contiene la información relativa al análisis, en particular la actividad, incertidumbre y límites de detección de todos los radioelementos considerados.

## **5.6 Validación del procedimiento**

Al objeto de comprobar la correcta puesta a punto del sistema de espectrometría, y en particular la validez de la calibración en eficiencia del sistema de espectrometría para las muestras de suelo en la geometría de medida, se han efectuado medidas de muestras de suelo de intercomparación. Por un lado, se ha comparado el valor obtenido de la medida de una muestra de suelo del proyecto (CO01S02), con el valor determinado por el laboratorio de Radiactividad Ambiental del Departamento de Ingeniería Nuclear y Mecánica de fluidos de la Universidad del País Vasco (UPV-EHU). El objeto de esta medida es verificar la coincidencia (comparabilidad) entre los resultados determinados por ambos laboratorios dentro del proyecto, dado que cada institución (CIEMAT y UPV) se ha encargado de la medida de la mitad de las muestras del proyecto.

Asimismo, se ha efectuado la medida de una muestra de referencia de suelo proporcionada por el OIEA (muestra de suelo IAEA-444), a fin de comprobar la exactitud de las medidas efectuadas con nuestro sistema. A continuación, se describen los resultados obtenidos en ambas comprobaciones experimentales.

### ***Muestra medida por CIEMAT y UPV: CO01S02***

Como se ha comentado, el objeto de esta medida es comprobar la coincidencia de los resultados obtenidos por ambas instituciones con la metodología empleada para la medida por espectrometría gamma de las muestras de suelo. En particular, el interés de esta intercomparación “interna” recae en comprobar que existe coincidencia en la medida del radioelemento Cs-137, objetivo central del presente trabajo.

La medida de la muestra se ha efectuado en la geometría característica, con un tiempo de medida  $t = 82400$  s. El análisis del espectro obtenido se ha efectuado siguiendo el protocolo genérico de análisis de las muestras. El valor medio de los resultados obtenidos para la concentración de actividad de Cs-137 es  $a = 9.81$  Bq/kg,  $U(a) = 0.60$  Bq/kg, siendo  $U$  la incertidumbre expandida con  $k = 2$ . El resultado obtenido por la UPV-EHU es  $a = 10.46$  Bq/kg,  $U(a) = 0.46$  Bq/kg. La comparación de ambos resultados mediante el criterio estadístico establecido permite afirmar, con un 95% de confianza, que ambas medidas son coincidentes.

### ***Muestra de Intercomparación IAEA-444***

El objeto de la medida de una muestra de intercomparación de esta naturaleza, distribuida a escala mundial, consiste en asegurar la correcta trazabilidad de las medidas efectuadas en el presente trabajo al Sistema Internacional de Unidades. En la Tabla 7 se muestran los radioelementos y sus energías asociadas, cuyo análisis se solicita en el ejercicio de intercomparación. La variedad de radioelementos y amplitud del rango energético que abarcan sus emisiones permitirá efectuar una validación genérica, no sólo para el radioelemento Cs-137, sino también para otros radioelementos de interés, como el Pb-210 y el Am-241, ambos con emisiones situadas en la zona de baja energía, crítica por los efectos de autoabsorción habituales en esta zona energética

Una vez recibida en el CIEMAT la muestra de suelo IAEA-444, se prepararon dos muestras en la geometría de medida. Se efectuó el recuento de ambas muestras con un tiempo de 40000 s. El análisis de los espectros se efectuó con el protocolo detallado en los apartados previos, determinándose los valores finales de actividad como promedio de ambas medidas. En la Tabla 7 se detallan los valores de actividad obtenidos, así como los valores de actividad de referencia proporcionados por el OIEA, ambos con su incertidumbre expandida U (k=2).

Como puede apreciarse, existe coincidencia entre los valores de actividad medidos y los de referencia, para todos los radioelementos analizados, dentro de la incertidumbre experimental. En ningún caso la diferencia entre el valor medido y el de referencia supera el valor de la incertidumbre de medida. En particular, para el radioelemento Cs-137, la coincidencia es especialmente buena, siendo la diferencia entre el valor de medida y el de referencia del 1 %. La mayor diferencia entre medida y valor de referencia aparece para el radioelemento Pb-210 (discrepancia del 20 %), debido a la elevada incertidumbre experimental asociada a la determinación de este radioelemento, como consecuencia de los efectos de autoabsorción, así como a la propia incertidumbre de recuento (la intensidad de emisión del fotón de 46.5 keV del Pb-210 es tan sólo del 4 %).

Radioelemento	E (keV)	Medida		Valores de referencia OIEA	
		A (Bq/kg)	U (Bq/kg)	A (Bq/kg)	U (Bq/kg)
<b>Pb-210</b>	46,5	<b>39,55</b>	<b>11,45</b>	<b>48</b>	<b>3</b>
<b>Am-241</b>	59,5	<b>60,66</b>	<b>8,00</b>	<b>55,6</b>	<b>3,2</b>
<b>Cs-137</b>	661,7	<b>67,67</b>	<b>6,28</b>	<b>68,5</b>	<b>2,76</b>
<b>Mn-54</b>	834,82	<b>66,14</b>	<b>6,16</b>	<b>61</b>	<b>2,48</b>
<b>Zn-65</b>	1115,52	<b>28,59</b>	<b>3,48</b>	<b>29,9</b>	<b>1,98</b>
<b>Co-60</b>	1332,48	<b>82,71</b>	<b>7,69</b>	<b>82,6</b>	<b>4,02</b>

***Tabla 7. Valores de actividad medidos y de referencia para el material IAEA-444.***

## 6. RESULTADOS

En esta sección se exponen los resultados de concentración de actividad de Cs-137 obtenidos para los suelos del proyecto medidos en las instalaciones del CIEMAT. En la Figura 8 se han representado los perfiles de actividad de Cs-137 determinados en los suelos. En la Figura 9 se ha representado, a modo de ejemplo, la actividad en función de la profundidad para dos estaciones de inventario. En las Tablas II.1 y II.2, expuestas en el ANEXO II, se recogen, respectivamente, los valores de actividad determinados en las estaciones de perfil y en las estaciones de inventario.

Como puede apreciarse en la Figura 8, los perfiles de actividad tienen una forma similar en todas las estaciones. La actividad es decreciente respecto a la profundidad, como consecuencia de la difusión del radioelemento desde la superficie. La máxima actividad se localiza en la superficie (estaciones NA05, ZA07, SO09, V21) o bien en un máximo subsuperficial (LE02, CC13, J25, MA29), estando esta actividad máxima comprendida en el intervalo 5-30 Bq/kg. La máxima profundidad alcanzada por el radioelemento en los suelos, expuesta en la Tabla 8, está comprendida entre los valores 15 cm (SO05) y 48 cm (MA29).

ESTACIÓN	I(Cs-137)	u (l)	Z <sub>Max</sub> (cm)
LE 02	2710,5	28,7	33
GAROÑA 4	609,9	59,4	--
NA 05	928,1	24,7	18
ZA 07	1505,1	25,1	18
SO 09	1089,8	20,0	15
B 12	2369,5	65,9	--
CC 13	2594,8	35,8	27
SA 14	798,8	46,7	--
TRILLO 15	1493,1	71,0	--
T 17	1003,9	42,1	--
CC 18	2358,8	81,7	--
V 21	1112,4	14,8	45
COFRENTES 21	4055,6	118,2	--
CO 24	1403,8	95,7	--
J 25	2069,5	20,1	39
MA 29	896,2	11,8	48
GR 30	631,8	41,2	--

**Tabla 8.** Inventarios de actividad de Cs-137 (Bq/m<sup>2</sup>) y máxima profundidad Z<sub>Max</sub> alcanzada por el radioelemento en los suelos analizados en el CIEMAT.

En la Tabla 8 quedan recogidos los valores de inventario determinados en todas las estaciones medidas, es decir, tanto para las estaciones de perfil como para las destinadas propiamente a inventario. El inventario de Cs-137 en los suelos analizados está comprendido entre el valor mínimo encontrado en GAROÑA, de  $609 \pm 59.4$  (k=1) Bq/m<sup>2</sup> y el valor máximo determinado en COFRENTES,  $4055 \pm 118$  (k=1) Bq/m<sup>2</sup>. Ha de tenerse en cuenta que estos valores no recogen la totalidad de los resultados del proyecto de investigación, tan sólo los correspondientes a las estaciones medidas en el CIEMAT.

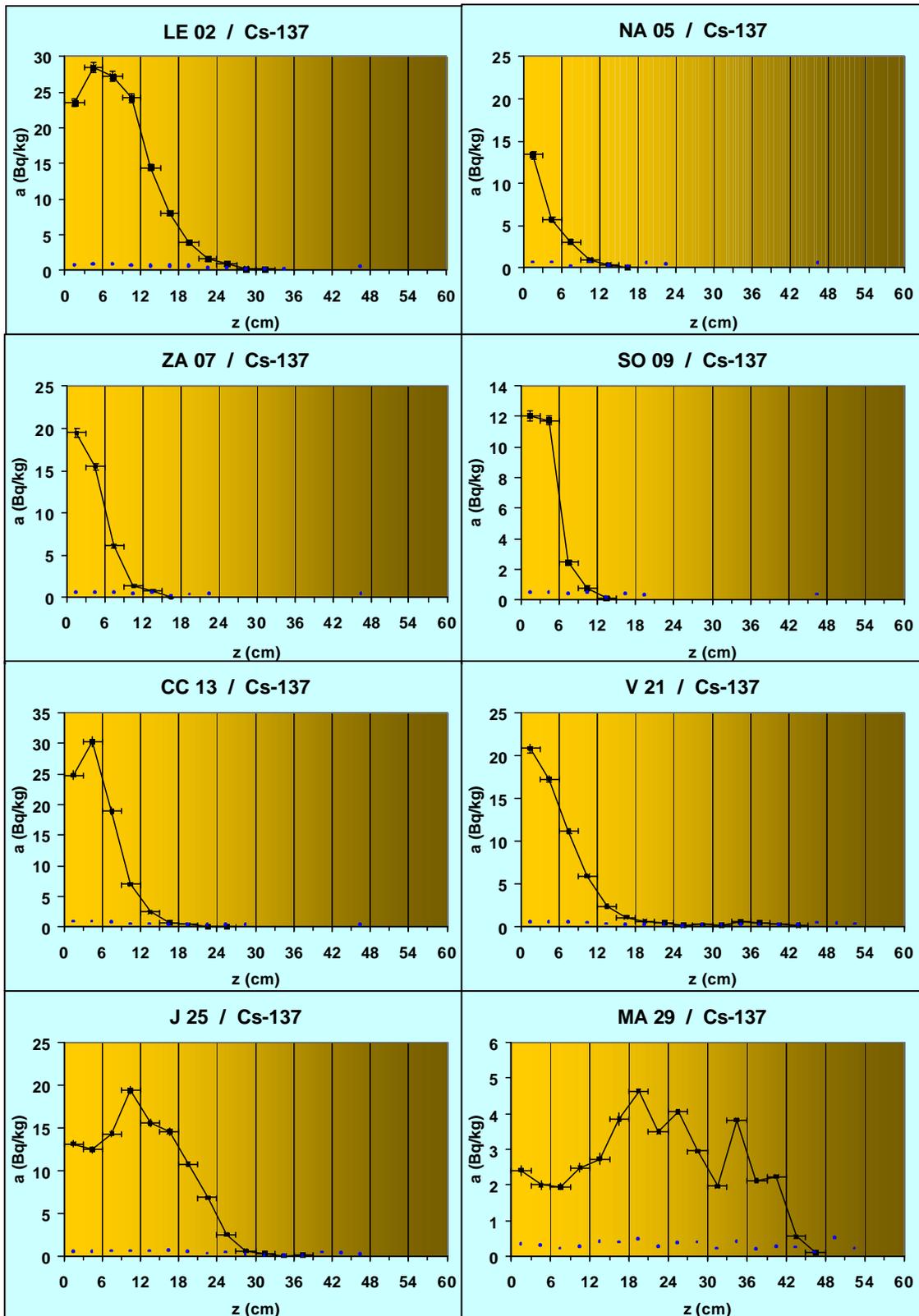
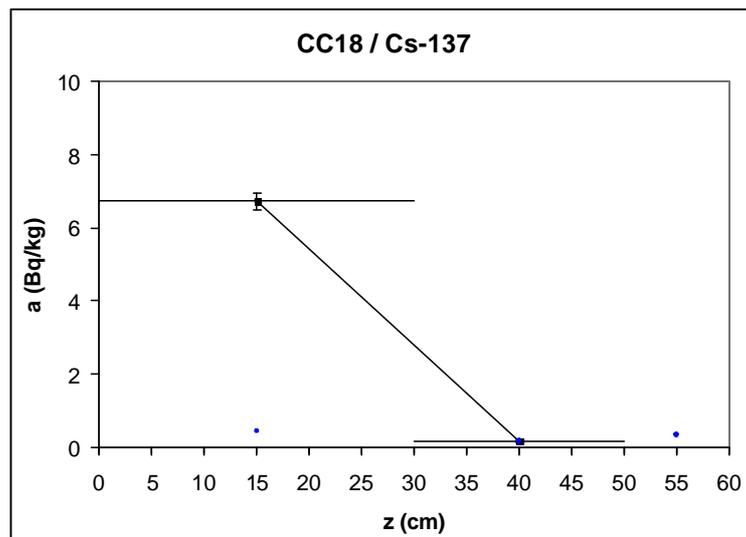
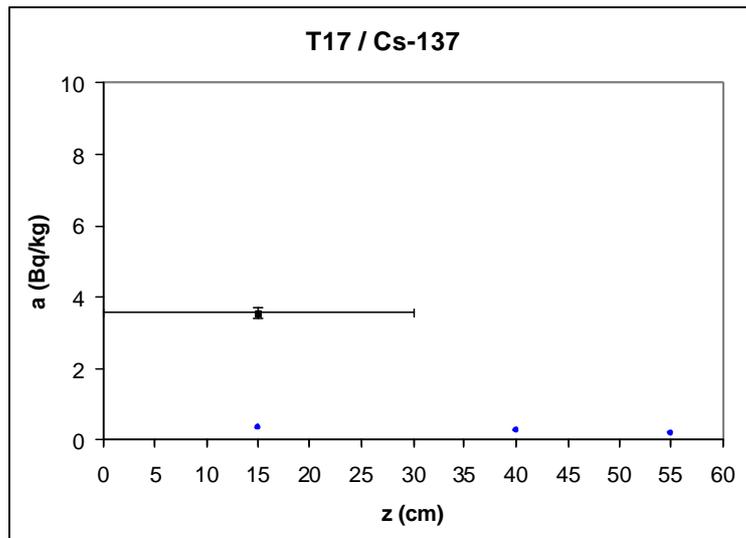


Figura 8. Perfiles de actividad de Cs-137 determinados en los suelos correspondientes al CIEMAT



**Figura 9.** Actividad en función de la profundidad para dos estaciones de inventario (T17 y CC18). La barra vertical representa la incertidumbre de medida de la concentración de actividad. La barra horizontal representa el espesor de la sección medida (espesores consecutivos 30, 20 y 10 cm). Se ha representado con un punto el límite de detección de la medida.

## **7. CONCLUSIONES**

Se ha efectuado la medida por espectrometría gamma de suelos del territorio peninsular español en las instalaciones del CIEMAT, como parte de un amplio proyecto de investigación encaminado a la determinación de los productos de fisión Cs-137 y Sr-90 en el territorio nacional. Se ha puesto especial énfasis en la descripción del equipo de espectrometría utilizado, fundamentalmente en la calibración en eficiencia, así como en el análisis de los espectros. Se ha comprobado la validez de la metodología aplicada, la comparabilidad y la trazabilidad de los resultados obtenidos mediante la medida de muestras de intercomparación.

Los resultados de actividad e inventario de Cs-137 obtenidos hasta el momento son coherentes con los encontrados en otras zonas de franja latitudinal próxima, lo cual confirma la fiabilidad de los resultados obtenidos en este estudio y permitirá en consecuencia su utilización posterior para fines de planificación de intervención en situaciones de emergencia, y su inclusión en los bancos de datos de Radiactividad Ambiental de la UE, asegurando la representatividad para condiciones mediterráneas, en particular del territorio nacional.

## 8. REFERENCIAS

1. Trueba C. et al. (2000) Estimación de índices de Vulnerabilidad Radiológica para los suelos peninsulares Españoles. Editorial CIEMAT. Madrid. ISBN 84-7834-374-1.
2. Dudal R. et al (1974) *Soil Map of The World. Vol. 1. Legend*. UNESCO.
3. Comisión of the European Communities (1985). *Soil Map of the European Communities 1:1 million*. Luxembourg. Off. Publi. European Communities.
4. De la Rosa et al. (2001) *Sistema Español de Información de Suelos sobre internet (Seisnet)*: <http://leu.irnase.csic.es/mimam/seisnet.htm>.
5. Universidad de Extremadura. Área de Edafología y Química Agrícola. *Catálogo de Suelos de Extremadura*. <http://www.unex.es/edafo/CatSuelos.html>.
6. CSIC, Estación Experimental Aula Dei, Departamento de Edafología. <http://www.eead.csic.es>.
7. Ministerio de Agricultura Pesca y Alimentación (2005) *Sistema de Información Geográfica de Parcelas Agrícolas. SIGPAC*. <http://www.jccm.es/agricul/sigpac.htm>
8. ISO 18589: “*Measurement of radioactivity in the environment – Soil – Part 2: Guide for the selection of sample areas, sampling, transport and conservation of soils*”
9. UNE 73311-5. “*Procedimiento para la conservación y preparación de muestras de suelo para la determinación de radiactividad ambiental*”.
10. International Organization for Standardization (ISO), ISO Guide 11929-7: *Determination of the Detection Limit and Decision Threshold for Ionising Radiation Measurements*, ISO, Geneva, Switzerland, 2005.
11. International Organization for Standardization (ISO), ISO DIS 11929: *Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit, and limits of the confidence interval) for ionising radiation measurements — Fundamentals and applications*. ISO. June 2008.
12. International Organization for Standardization (ISO), *Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement*, ISO, Geneva, Switzerland, 1995.
13. R. Blagoeva & L. Zikovsky. Geographical and vertical distribution of Cs-137 in soils in Canada. *J. Environ. Radioactivity*, 27(3), 269-275, 1995.
14. K. Bunzl & W. Kracke. Cumulative deposition of <sup>137</sup>Cs, <sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu and <sup>241</sup>Am from global fallout in soils from forest, grassland and arable land in Bavaria (FRG). *J. Environ. Radioactivity*, 8, 1-14, 1988.
15. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) 2000 Report to the General Assembly. United Nations, New York, 2000.

**ANEXO I.**

**ESPECIFICACIONES TÉCNICAS DEL  
ESPECTRÓMETRO GAMMA**



## DETECTOR SPECIFICATION AND PERFORMANCE DATA

### Specifications

Detector Model GX10022 Serial number b 05096  
 Cryostat Model 7500SL-RDC-6-ULB  
 Preamplifier Model 2002CSL

The purchase specifications and therefore the warranted performance of this detector are as follows :

Nominal volume      cc Relative efficiency 100 %  
 Resolution 2.2 keV (FWHM) at 1.33 MeV  
     keV (FWTM) at 1.33 MeV  
1.30 keV (FWHM) at 122 keV  
     keV (FWTM) at       
 Peak/Compton 76:1 Cryostat well diameter      Well depth      mm  
 Cryostat description or Drawing Number if special Vertical Dipstick, type 7500SL-RDC-6-ULB

### Physical Characteristics

Geometry Coaxial one open end, closed end facing window  
 Diameter 84 mm Active volume      cc  
 Length 71.5 mm Crystal well depth      mm  
 Distance from window (outside) 5 mm Crystal well diameter      mm

### Electrical Characteristics

Depletion voltage (+)4000 Vdc  
 Recommended bias voltage Vdc (+)4500 Vdc  
 Leakage current at recommended bias 0.01 nA  
 Preamplifier test point voltage at recommended voltage -0.7 Vdc

### Resolution and Efficiency

With amp time constant of 6  $\mu$ s

Isotope	<sup>57</sup> Co	<sup>60</sup> Co			
Energy (keV)	122	1332			
FWHM (keV)	1.02	2.04			
FWTM (keV)		4.03			
Peak/Compton		79.4:1			
Rel. Efficiency		101.3%			

- Tests are performed following IEEE standard test ANSI/IEEE std325-1996

- Standard Canberra electronics used - See Germanium detector manual Section 7

Tested by :

Date : December 21, 2004

Approved by :

Date : December 21, 2004

*CANBERRA Semiconductor is an ISO 9000 certified company*



**ANEXO II.**  
**VALORES DE ACTIVIDAD DE Cs-137 EN LOS SUELOS**



z (cm)	LE 02		NA 05		ZA 07		SO 09		CC 13		V 21		J 25		MA 29	
	a	u (a)	a	u (a)	a	u (a)	a	u (a)	a	u (a)	a	u (a)	a	u (a)	a	u (a)
0-3	23,52	0,59	13,34	0,41	19,47	0,49	12,04	0,32	24,85	0,65	20,82	0,51	13,18	0,37	2,41	0,14
3-6	28,48	0,70	5,71	0,28	15,45	0,41	11,76	0,32	30,29	0,75	17,28	0,44	12,47	0,35	2,00	0,12
6-9	27,23	0,68	3,06	0,26	6,08	0,24	2,46	0,14	18,98	0,52	11,16	0,33	14,35	0,39	1,96	0,09
9-12	24,20	0,59	0,92	0,22	1,34	0,16	0,75	0,14	6,95	0,22	5,94	0,22	19,44	0,49	2,50	0,11
12-15	14,43	0,40	0,34	0,09	0,82	0,17	0,10	0,04	2,41	0,16	2,41	0,12	15,60	0,41	2,73	0,16
15-18	8,00	0,28	0,08	0,07	0,02	0,06	< 0,37		0,62	0,08	1,15	0,10	14,52	0,41	3,86	0,18
18-21	3,83	0,21	< 0,53		< 0,31		< 0,30		0,34	0,09	0,65	0,07	10,78	0,32	4,64	0,21
21-24	1,61	0,09	< 0,46		< 0,43				0,00	0,08	0,48	0,08	6,89	0,19	3,50	0,12
24-27	0,80	0,07							0,03	0,09	0,13	0,05	2,61	0,16	4,06	0,17
27-30	0,15	0,05							< 0,39		0,27	0,06	0,66	0,09	2,95	0,16
30-33	0,10	0,05									0,16	0,08	0,34	0,03	1,97	0,09
33-36											0,61	0,08	0,08	0,04	3,83	0,18
36-39											0,46	0,06	0,12	0,04	2,12	0,08
39-42											0,27	0,06	< 0,45		2,23	0,11
42-45											0,11	0,05	< 0,41		0,55	0,08
45-48	< 0,51		< 0,50		< 0,46		< 0,336		< 0,39		< 0,43		< 0,29		0,12	0,04
48-51											< 0,39				< 0,52	
51-54											< 0,33				< 0,22	

*Tabla II.1.* Actividad  $a$  e incertidumbre  $u$  (Bq/kg) en las estaciones de perfil.



	GAROÑA 04		B12		SA14		TRILLO 15		T17		CC 18		COFRENTES 21		CO 24		GR 30	
<i>z</i> (cm)	<i>a</i>	<i>u</i> ( <i>a</i> )	<i>a</i>	<i>u</i> ( <i>a</i> )	<i>a</i>	<i>u</i> ( <i>a</i> )	<i>a</i>	<i>u</i> ( <i>a</i> )	<i>a</i>	<i>u</i> ( <i>a</i> )	<i>a</i>	<i>u</i> ( <i>a</i> )	<i>a</i>	<i>u</i> ( <i>a</i> )	<i>a</i>	<i>u</i> ( <i>a</i> )	<i>a</i>	<i>u</i> ( <i>a</i> )
0-30	1,22	0,12	5,84	0,16	2,16	0,13	3,69	0,17	3,56	0,14	6,72	0,23	10,2	0,31	3,15	0,215	1,58	0,103
30-50	0,17	0,05	< 0,19		< 0,25		< 0,61		< 0,28		0,17	0,05	1,13	0,11	< 0,64		< 0,21	
50-60	< 0,34		< 0,51		< 0,58		< 0,51		< 0,19		< 0,35		0,068	0,044	< 0,48		< 0,30	

**Tabla II.2.** Actividad *a* e incertidumbre *u* (Bq/kg) en las estaciones de inventario.

