

***VARIACIÓN EN LAS EFICIENCIAS DE DETECCIÓN DE
RADIONUCLEIDOS EN MUESTRAS VOLUMÉTRICAS MEDIANTE
ESPECTROMETRÍA GAMMA DE ALTA RESOLUCIÓN***

***CARRERA: ESPECIALIZACIÓN EN RADIOQUÍMICA
Y APLICACIONES NUCLEARES***

Alumno: María Clara Ferrari
Director: Gabriela L. Cerutti
Co-Director: Mario P. Rossi

A la Educación pública y gratuita

A la Ciencia

Al Plan Nuclear Argentino

ÍNDICE

RESUMEN	1
CAPÍTULO 1	2
1.1. Introducción.....	2
1.1.1. <i>Interacción de los fotones gamma con la materia.....</i>	<i>2</i>
1.1.2. <i>Atenuación de la Radiación Gamma</i>	<i>5</i>
1.1.3. <i>Detectores de Germanio.....</i>	<i>6</i>
1.1.4. <i>Eficiencia de detección</i>	<i>7</i>
1.1.5. <i>Efectos de suma por coincidencia</i>	<i>9</i>
1.1.6. <i>Simulaciones Monte Carlo.....</i>	<i>12</i>
1.1.7. <i>Metrología de Radioisótopos</i>	<i>13</i>
1.2. Objetivo.....	14
CAPÍTULO 2	15
2.1. Desarrollo experimental	15
2.1.1. <i>Preparación de los patrones de tierra.....</i>	<i>15</i>
2.1.2. <i>Preparación de los patrones de harina</i>	<i>21</i>
2.1.3. <i>Medición de los patrones.....</i>	<i>25</i>
2.1.4. <i>Medición de fondos espectrales</i>	<i>27</i>
2.1.5. <i>Análisis de datos.....</i>	<i>27</i>
2.2. Simulaciones Monte Carlo.....	28
CAPÍTULO 3	30
3.1. Resultados experimentales.....	30
3.1.1. <i>Caracterización de la tierra.....</i>	<i>30</i>
3.1.2. <i>Espectrometría gamma de alta resolución.....</i>	<i>31</i>
3.1.3. <i>Áreas netas.....</i>	<i>35</i>
3.1.4. <i>Eficiencias de detección</i>	<i>40</i>

3.2. Resultados de las simulaciones	42
3.3. Comparación de los resultados	42
3.3.1. <i>Diferencias entre patrones de tierra homogéneos y en capas.....</i>	<i>42</i>
3.3.2. <i>Diferencias entre resultados experimentales y simulaciones.....</i>	<i>45</i>
3.3.3. <i>Diferencias entre distintas matrices</i>	<i>46</i>
CONCLUSIONES	48
REFERENCIAS.....	49
ANEXOS	51
<i>Anexo 1: cálculo de incertidumbres.....</i>	<i>51</i>
AGRADECIMIENTOS.....	53

RESUMEN

En la medición de la radiactividad de las muestras ambientales no siempre está disponible un material de referencia apropiado, con la misma composición y densidad para la calibración del detector. En estos casos, es común preparar un material *ad hoc*, ya sea un estándar homogéneo o uno preparado mediante el sembrado de la matriz con gotas de solución calibrada en capas discretas. Este último puede ser el enfoque más adecuado en aquellos casos en los que no es fácil remover la mezcla, como en las muestras de metal. Sin embargo, la equivalencia entre las muestras homogéneas y discretas no siempre está garantizada.

Este trabajo surgió como resultado de la colaboración entre el Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes del Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (LMRI-CIEMAT) de España y el Laboratorio Metrología de Radioisótopos de la Comisión Nacional de Energía Atómica (LMR-CNEA) para el estudio de las limitaciones en el uso de materiales de referencia preparados mediante el sembrado de la matriz en capas discretas con diferentes radionucleidos, para diferentes materiales y geometrías.

Las matrices seleccionadas para los presentes ensayos han sido tierra y harina. Los patrones de tierra han sido contaminados homogéneamente con ^{241}Am , ^{137}Cs , ^{134}Cs y ^{60}Co . Los patrones de harina con ^{241}Am y ^{60}Co . También se han preparado patrones mediante sembrado en capas discretas para los mismos materiales y con los mismos radionucleidos. Usando los resultados experimentales, se ha realizado una caracterización mediante un modelo de Monte Carlo para ambos tipos de fuentes.

Se han determinado aquellos casos en los que las fuentes de capas discretas no son equivalentes al modelo homogéneo, particularmente para ^{241}Am , incluso en matrices con densidades cercanas a uno. En este trabajo, se presentarán todos los casos estudiados.

CAPÍTULO 1

1.1. Introducción

1.1.1. Interacción de los fotones gamma con la materia

La detección de cualquier partícula o radiación depende de la producción de partículas secundarias cargadas que se pueden colectar para producir una señal eléctrica. Este comportamiento difiere con el de los fotones gamma que, al no presentar carga, no pueden producir ionización y excitación directa en el material detector. La detección de éstos depende de otros tipos de interacciones que transfieren la energía a electrones dentro de dicho material. Estos electrones pierden su energía por ionización y excitación de los átomos del medio detector, dando lugar a pares de electrones y huecos. Es de esperar que el grado de interacción de la radiación gamma con la materia dependa de la energía de la radiación ya que el número de pares producido es proporcional a la energía de los electrones de la interacción primaria. La Figura 1.1 muestra la variación del coeficiente de atenuación en función de la energía del rayo gamma para el germanio.

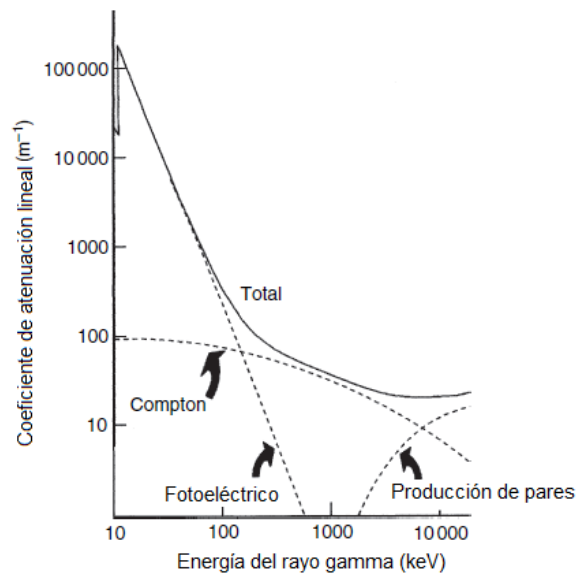


Figura 1.1. Gráfico correspondiente a la variación del coeficiente de atenuación lineal del germanio en función de la energía del rayo gamma. (Obtenido de Glenn Knoll, *Radiation Detection and Measurement*)

Como se puede observar en esta curva, el coeficiente de atenuación presenta valores altos a bajas energías, disminuyendo primero de manera pronunciada y luego con una pendiente menor a energías medias. Por último, la curva crece

levemente a altas energías. Estas características pueden ser explicadas por un examen detallado de los procesos de interacción involucrados.

Varios mecanismos de interacción son conocidos para los rayos gamma en la materia, aunque sólo tres juegan un rol importante en las mediciones: efecto fotoeléctrico, dispersión Compton y creación de pares. Todos estos procesos provocan una transferencia parcial o total de la energía del fotón gamma al electrón. Estos resultan en cambios abruptos y repentinos en el fotón gamma, ya sea por su desaparición completa o su dispersión. Este comportamiento se contrasta con el de las partículas cargadas, que disminuyen lenta y gradualmente su energía mediante interacciones simultáneas y continuas.

- *Efecto fotoeléctrico*

En este proceso el fotón sufre una interacción con un átomo y desaparece completamente. En su lugar se emite un *fotoelectrón* de la corteza del átomo. El origen más probable del fotoelectrón es la capa más estrechamente unida al núcleo (capa *K*) y tendrá una energía dada por:

$$E_{e^-} = h\nu - E_b \quad (1)$$

donde E_b representa la energía de enlace del electrón en su capa original y $h\nu$ la energía del fotón incidente. Para energías de rayos gamma de alrededor de cientos de keV el electrón acarrea con la mayoría de la energía original del fotón incidente. La interacción además deja como resultado el átomo ionizado, con una vacancia en una de sus capas electrónicas, que es llenada rápidamente con un electrón libre del medio y/o con un electrón de otra capa, mediante un reordenamiento, por lo que también pueden generarse rayos X característicos.

El efecto fotoeléctrico es el modo predominante de la interacción de rayos gamma a bajas energías, y se ve aumentado en materiales de alto número atómico.

La probabilidad de que un fotón sufra este efecto puede expresarse como una sección eficaz, τ , que varía con el número atómico Z del material y con la energía E como:

$$\tau \propto \frac{Z^n}{E_\gamma^m} \quad (2)$$

donde n y m varían entre 3 y 5, dependiendo de la energía. El coeficiente de atenuación por efecto fotoeléctrico puede relacionarse con su correspondiente sección eficaz como:

$$\mu_{EF} = \tau \cdot \rho \cdot N_A / A \quad (3)$$

donde ρ es la densidad del material, A es la masa atómica promedio y N_A el número de Avogadro.

- *Dispersión Compton*

Esta interacción tiene lugar entre el fotón gamma incidente y un electrón del material. Es el mecanismo de interacción más predominante para energías medias, típicas de fuentes de radioisótopos.

El rayo gamma es desviado con un cierto ángulo respecto de su dirección original y transfiere una porción de su energía al electrón. Debido a que todos los ángulos de desviación son posibles, la energía transferida al electrón puede variar de cero a largas fracciones. La energía del electrón será entonces:

$$E_{e^-} = hv - hv' - E_b \quad (4)$$

donde E_b representa la energía de enlace del electrón en su capa original, hv la energía del fotón incidente y hv' la energía del fotón dispersado. En la Figura 1.2 se observa la forma del espectro debido a este efecto.

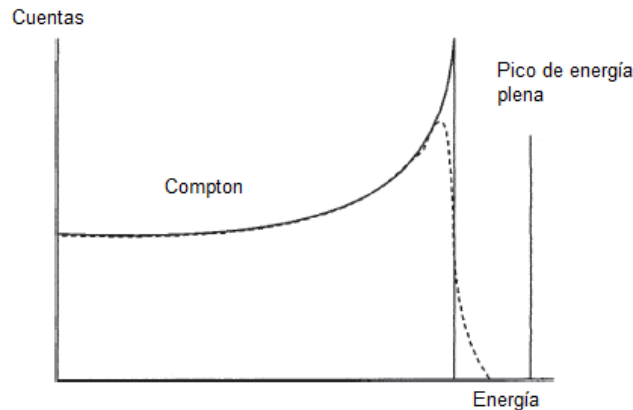


Figura 1.2. Energía transferida por dispersión Compton. (Obtenido de Glenn Knoll, *Radiation Detection and Measurement*)

La sección eficaz del efecto Compton, σ , está relacionada con la energía del rayo gamma:

$$\sigma \propto f(E_\gamma) \quad (5)$$

La función $1/E_\gamma$ fue propuesta como $f(E_\gamma)$ de forma apropiada. Realizando una analogía con la ecuación (3) se puede calcular el coeficiente de atenuación por efecto Compton como:

$$\mu_c = \sigma \cdot \rho \cdot N_A / A \quad (6)$$

La probabilidad de dispersión de Compton depende de la cantidad de electrones disponibles como objetivos de dispersión y, por lo tanto, aumenta linealmente con el número atómico.

- *Creación de pares*

Si la energía del rayo gamma excede dos veces la masa del electrón (la masa de un electrón es aproximadamente de $9,109 \cdot 10^{-31}$ kg que, según el principio de equivalencia masa-energía de Einstein, corresponde a una energía en reposo de 511 keV) el proceso de creación de pares es energéticamente posible. Sin embargo, la probabilidad de esta interacción es muy baja hasta que la energía del fotón gamma es de varios MeV. En la interacción el fotón gamma desaparece y es reemplazado por un par electrón-positrón. Todo el exceso de energía por encima de 1022 keV se transforma en energía cinética que será compartida entre el electrón y el positrón.

La sección eficaz para esta interacción, κ , depende de la energía del fotón y del número atómico del material:

$$\kappa \propto Z^2 f(E_\gamma, Z) \quad (7)$$

El coeficiente de atenuación es calculado de manera similar al del efecto fotoeléctrico:

$$\mu_{CP} = \kappa \cdot \rho \cdot N_A / A \quad (8)$$

La variación de κ con la energía está determinada por la función $f(E_\gamma, Z)$ que aumenta continuamente desde el umbral a 1,02 MeV.

1.1.2. Atenuación de la Radiación Gamma

El coeficiente de atenuación total es la suma de cada uno de los coeficientes de atenuación correspondientes a cada proceso de interacción:

$$\mu_T = \mu_{EF} + \mu_C + \mu_{CP} \quad (9)$$

En términos de las secciones eficaces esta ecuación puede escribirse como:

$$\mu_T = \left(\frac{\rho \cdot N_A}{A}\right) (\tau + \sigma + \kappa) \quad (10)$$

En la práctica el coeficiente de atenuación más utilizado es el de atenuación másica, que es la relación entre el coeficiente de atenuación y la densidad:

$$\frac{\mu_T}{\rho} = \left(\frac{N_A}{A}\right) (\tau + \sigma + \kappa + \sigma_{DR}) \quad (11)$$

Este coeficiente sólo expresa la probabilidad de que un rayo gamma de cierta energía interactúe con el material en cuestión. No tiene en cuenta el fotón que pueda emerger como consecuencia de dicha interacción.

Se puede calcular el grado de atenuación utilizando la siguiente ecuación:

$$I = I_0 e^{-\mu x} \quad (12)$$

donde I e I_0 son las intensidades de los rayos gamma con y sin atenuación, respectivamente, para un material de espesor x [1,2].

1.1.3. Detectores de Germanio

En materiales cristalinos el arreglo periódico de los átomos establece bandas de energía permitidas para los electrones dentro de ese sólido. La energía de cualquier electrón dentro de este tipo de material se encuentra confinada a una de estas bandas de energía, que puede estar separada por rangos de energías prohibidas. Un esquema simplificado se muestra en la Figura 1.3. La banda inferior (banda de valencia) representa a los electrones externos que se encuentran unidos a sitios específicos de la red dentro del cristal. Para el Germanio, son partes del enlace covalente que constituyen las fuerzas interatómicas dentro del cristal. La banda superior (banda de conducción) corresponde a aquellos electrones que pueden migrar a través del cristal. Éstos contribuyen a la conductividad eléctrica del material. Las dos bandas están separadas por un intervalo (“gap”) cuyo tamaño determina si el material es un semiconductor o un aislante.

En ausencia de excitación térmica, tanto los aislantes como los semiconductores presentan una configuración en la que la banda de valencia está completamente llena, mientras que la banda de conducción se encuentra completamente vacía. Para que haya conductividad el electrón debe cruzar el “gap” y alcanzar la banda de conducción. Por esta razón la conductividad es mucho más baja.

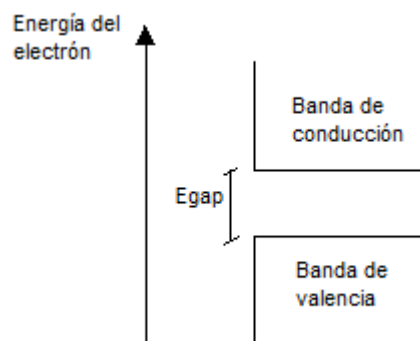


Figura 1.3. Estructura de bandas para energías de electrones en semiconductores.

Con suficiente energía térmica es posible que un electrón de la banda de valencia pueda ser elevado a la banda de conducción. Este proceso crea un electrón en la banda de conducción vacía y también deja una vacancia (hueco) en la banda de valencia. Bajo la influencia de un campo eléctrico se puede hacer que el electrón se mueva en la banda de conducción. A su vez el hueco, que representa una carga neta positiva, también tenderá a moverse en una dirección opuesta a la del electrón. El movimiento de ambas cargas contribuye a la conductividad observada del material.

En los detectores tipo semiconductores los portadores de información son los pares electrón-hueco producidos tras la interacción de la radiación con el material. La ventaja de estos detectores es que la pequeña energía de ionización, de aproximadamente 3 eV para el Germanio, permite un aumento considerable del número de cargas para una energía depositada dada. El inconveniente es que algunos electrones de la banda de valencia pueden tener la suficiente energía térmica como para alcanzar la banda de conducción, por lo que es necesario refrigerar a estos equipos.

En los detectores fabricados con Germanio se han conseguido niveles de pureza muy grandes, permitiendo mejores resoluciones. Estos detectores reciben el nombre de detectores de Germanio hiperpuro (HPGe)

En función de la aplicación, existe una amplia variedad de tipos de detectores HPGe. Los más utilizados son los detectores planos, los detectores coaxiales, y los detectores de pozo.

1.1.4. Eficiencia de detección

Hay diferentes tipos de eficiencias, según el uso que se le dé:

- *Eficiencia relativa*: es la relación de la eficiencia de detección del ^{60}Co a 1332 keV comparada con la eficiencia de un detector de yoduro de sodio estándar.
- *Eficiencia intrínseca*: viene dada por el cociente entre los fotones detectados y los que incidieron.
- *Eficiencia absoluta en el pico de energía plena*: relaciona el área del pico obtenido (fotones que interactúan con el detector) con el número de fotones gamma emitidos por la fuente. Depende del arreglo geométrico y es la utilizada en el cálculo de actividad.
- *Eficiencia absoluta total*: es la relación entre los fotones gamma emitidos por la fuente y el número de cuentas detectado, teniendo en cuenta el pico de energía plena y las absorciones incompletas representadas en el continuo Compton

Como se dijo previamente, para calcular la actividad de una fuente se utiliza la eficiencia absoluta en el pico de energía plena (ε). La relación entre ésta y la actividad (A) -en Becquerels o desintegraciones por segundo- viene dada por:

$$\varepsilon = N / (A \cdot t \cdot i) \quad (13)$$

Donde N es el número de cuentas (área neta del pico obtenido en el espectro), t el tiempo vivo de medición, e i es la intensidad del rayo gamma, es decir, la probabilidad de emisión de los fotones para una energía dada. Este último es un dato bibliográfico que se puede obtener en bases de datos nucleares. La más recomendada es la perteneciente al Laboratorio Nacional Henri Becquerel (París, Francia) [3]. La actividad, a su vez, es la que corresponde a la fecha de medición.

Es muy común medir fuentes con distintos nucleidos emisores gamma y realizar una curva de calibración de la eficiencia en función de la energía. La eficiencia suele aumentar con la energía de forma aproximadamente lineal o cuadrática, hasta aproximadamente los 122 keV, y luego disminuye. Por esta razón es conveniente dividir los datos y graficar la curva en dos partes: una para energías menores a 122 keV y otra para energías mayores. En la Figura 1.4 se muestra una típica curva de eficiencia en función de la energía, correspondiente a un patrón multigamma.

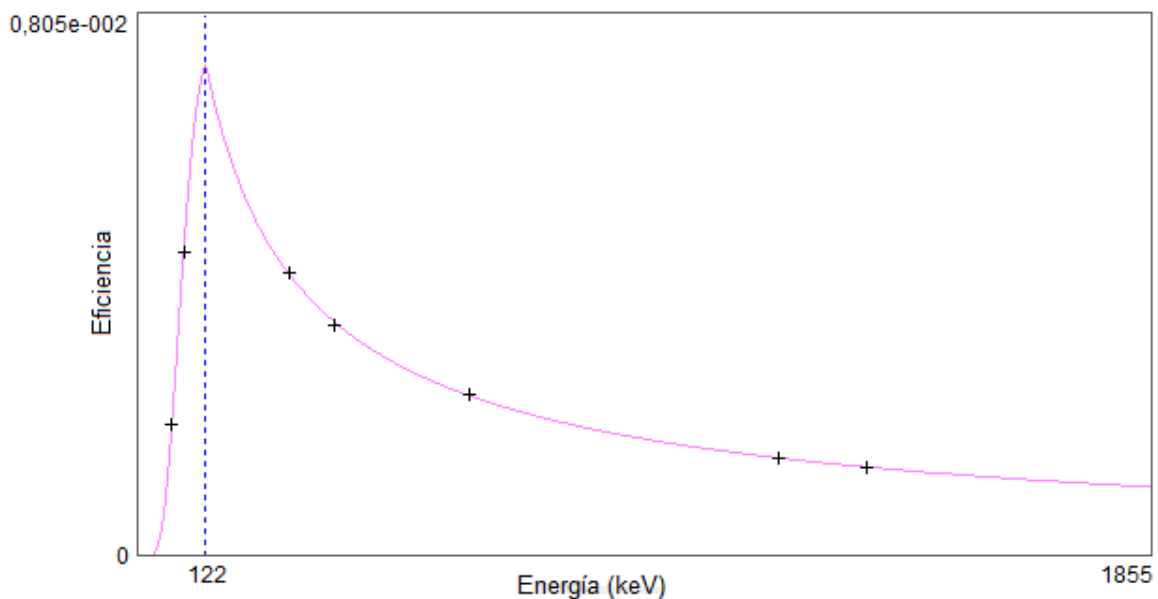


Figura 1.4. Curva de eficiencia en función de la energía, para un patrón multigamma.

1.1.5. Efectos de suma por coincidencia

El efecto de suma por coincidencia es una de las mayores fuentes de error sistemático en la espectrometría gamma. Tal efecto ocurre cuando dos o más rayos γ emitidos en coincidencia en el decaimiento de un mismo núcleo, son tomados simultáneamente como un solo pulso dentro del tiempo de resolución del detector. El pulso resultante no estará, en general, dentro del pico de energía total correspondiente a cualquiera de los dos, dando como consecuencia una reducción en la eficiencia máxima de la energía total, debido a la pérdida inevitable de los eventos que corresponden a la absorción de energía total.

La magnitud de este efecto depende del esquema de decaimiento del radionucleido, de la eficiencia del detector y de la geometría de medición. Si bien es independiente de la tasa de conteo, se hace más notable a menores distancias entre la fuente y el detector. La necesidad de elevar los niveles de detección, especialmente en muestras ambientales, trae consigo el uso de geometrías de medición cercanas al detector asociado, en su mayoría de veces, al empleo de detectores de alta eficiencia relativa. Ello aumenta la probabilidad del efecto de suma por coincidencia resultando en errores muy grandes.

Al emplear cualquier fuente que emita más de un rayo gamma en coincidencia (como por ejemplo el ^{134}Cs , que presenta picos de alta intensidad en 569,03, 604,72 y 795,86 keV) se debe tener cuidado para asegurar que las intensidades máximas medidas no se vean afectadas por los efectos de suma por coincidencia [1]. En la Figura 1.5 se puede observar el esquema de desintegración del ^{134}Cs , a modo de ejemplo [4].

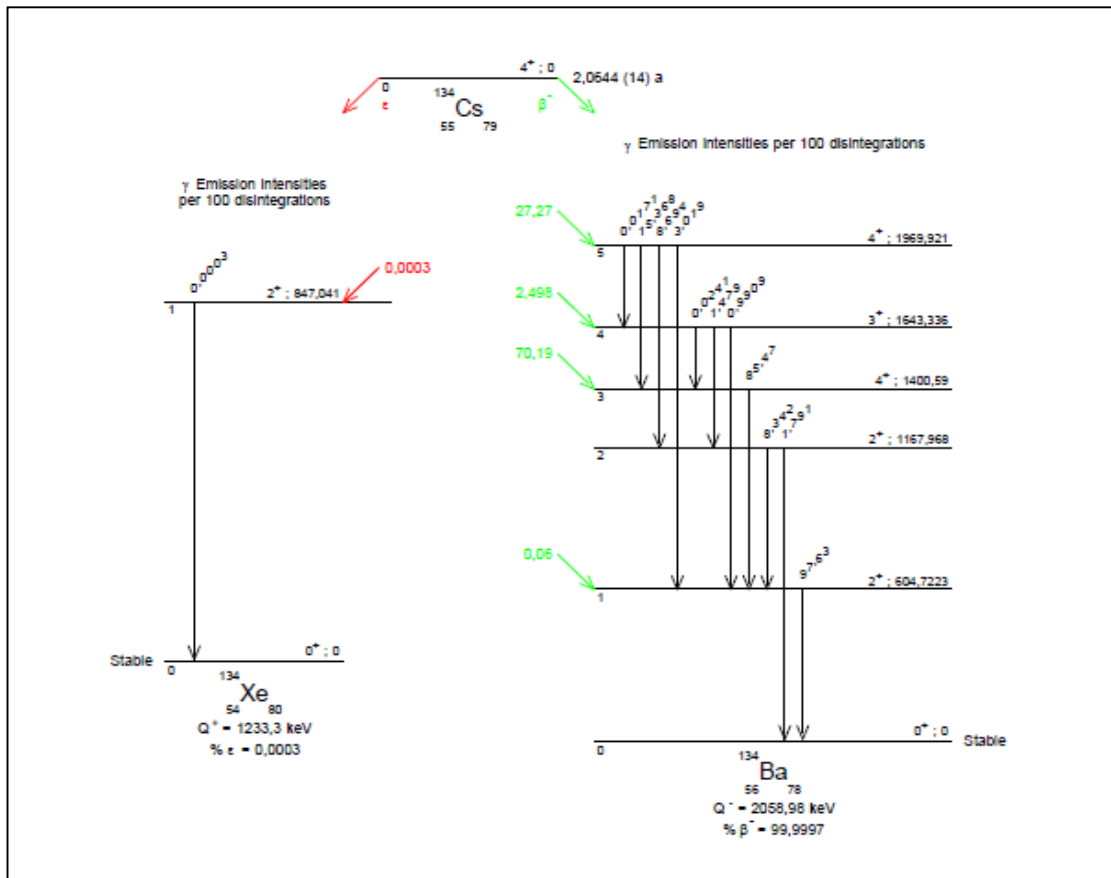


Figura 1.5. Esquema de desintegración del ^{134}Cs . (Obtenido de LNB - LNHB / CEA - Table de Radionucléides)

Las evaluaciones cuantitativas de los cambios que pueden ocurrir en la intensidad máxima de la energía total debido a los efectos de suma junto con los métodos de cálculo sugeridos para corregir tales errores fueron realizados por diversos Autores. Las correcciones pueden estimarse experimentalmente mediante el método de registro de espectros en dos geometrías de detector (cerca y lejos). Algunos han desarrollado programas que requieren el ingreso de datos del esquema de desintegración nuclear, como el tipo de desintegración y las energías de los rayos X, los coeficientes de conversión, el pico y la eficiencia total. Esto puede consumir mucho tiempo, especialmente si están involucrados esquemas de decaimiento complejos. También la correlación angular, debido al ángulo sólido, es difícil de evaluar ya que no se conocen la forma y el tamaño exactos del volumen sensible del detector HPGe.

S.I. Kafala desarrolló una técnica que permite estimar el factor de suma por coincidencia de forma simple, basada en relaciones de tasas de conteo de un pico de un nucleido que puede presentar este efecto (fuente), y un pico de un nucleido monoenergético (referencia), medidos lejos y cerca del detector. Sea N_i la tasa de conteo de un dado pico, donde el subíndice (i) puede ser (r) o (f) como referencia y fuente, respectivamente. Entonces:

$$R_l = \left(\frac{N_r}{N_f} \right)_l \quad (14)$$

$$R_c = \left(\frac{N_r}{N_f} \right)_c \quad (15)$$

donde R_l , R_c son las relaciones de las tasas de conteo entre la referencia y la fuente, lejos y cerca del detector, respectivamente.

Suponiendo que la fuente contiene varias energías de rayos γ en cascada, entonces esperamos que la tasa de conteo en la geometría cercana se vea más afectada por las pérdidas por coincidencias que en la geometría lejana. Si la referencia es un nucleido monoenergético (por ejemplo ^{137}Cs) no presentará pérdidas debido a este efecto. Por lo tanto, es de esperar que R_c sea mayor que R_l por un factor C_f . Entonces, el factor de corrección de suma por coincidencia se define como la relación de R_c y R_l , es decir:

$$C_f = \frac{R_c}{R_l} \quad (16)$$

[5].

Por otra parte, T. Vidmar desarrolló el programa EFFTRAN (*Efficiency transfer and coincidence summing corrections for environmental gamma-ray spectrometry*), el cual es una implementación del método de transferencia de eficiencia para muestras cilíndricas en espectrometría gamma, basada en una integración del código Monte Carlo. El detector tiene que ser modelado considerando diferentes parámetros del mismo, que se encuentran en la hoja de datos del fabricante. Estos parámetros abarcan las distintas dimensiones del detector, tales como el cristal, el soporte del mismo, los espesores de capas muertas, y la composición y densidad de los materiales. Asimismo, deben conocerse también los parámetros de la muestra y su recipiente, tales como sus dimensiones, las composiciones y densidades de sus materiales y la altura de llenado.

Sus principales características son:

- Eficiencia total de probabilidades de interacción calculada con la integración de Monte Carlo
- Cortos tiempos de ejecución
- Cuenta con archivos de datos de distintos materiales
- Uso limitado a detectores coaxiales y muestras cilíndricas (incluyendo detectores planos y fuentes puntuales)
- Interfaz de usuario en Excel, usando VBA (Visual Basic for Applications)
- En particular, este programa cumple con los criterios requeridos para su uso en espectrometría gamma ambiental [6].

1.1.6. Simulaciones Monte Carlo

El método de Montecarlo es un método no determinista o estadístico numérico, usado para aproximar expresiones matemáticas complejas y costosas de evaluar con exactitud. Permite extraer un conjunto de valores provenientes de una función de distribución de probabilidad y calcular esperanzas de funciones asociadas a ésta.

Monte Carlo se basa en la generación de números aleatorios, o mejor dicho, pseudo-aleatorios, y la aplicación de estrategias matemáticas que incluyen transformación del espacio de coordenadas y cálculo de funciones inversas, entre otras técnicas. Este método toma ventaja sobre los métodos determinísticos a medida que aumenta el número de dimensiones del problema, ya que la convergencia se independiza de las dimensiones del problema, y la exactitud del método sólo depende de la varianza.

La necesidad de caracterizar un detector por medio de la generación de un input de simulación Monte Carlo surge de las ventajas que presenta contar con dicha herramienta, tales como:

- Obtención de curvas de eficiencias a diferentes distancias entre fuente y detector, sin necesidad de realizar la experiencia real.
- Simulación de fuentes patrones, las cuales son costosas o a veces complicadas de fabricar.
- Diseño de contenedores que por sus características geométricas permitan la
- mejora de la eficiencia del sistema fuente - detector.
- Minimización de la irradiación del personal.
- Intercambio de conocimientos entre laboratorios.
- Reducción de costos en la compra de detectores.

Existen diferentes programas de simulación (códigos) que utilizan la herramienta Monte Carlo en su código fuente para analizar el comportamiento de la radiación en un determinado material. Estos programas tienen en cuenta aspectos físicos como el tipo de radiación emitida y su interacción con la materia, y aspectos geométricos como la forma de la fuente, la composición de su matriz y las dimensiones del detector, entre otros [7].

Para el presente trabajo se utilizó PENELOPE (*Penetration and ENergy LOss of Positrons and Electrons*) desarrollado en la década del '90 en la Universidad de Barcelona. PENELOPE cubre el rango de energía desde 50 eV hasta 1 GeV. Los modelos de interacción física implementados en el código se basan en la información más confiable disponible en la actualidad. Estos modelos combinan resultados de cálculos de primeros principios, modelos semi-empíricos y bases de datos evaluadas [8].

1.1.7. Metrología de Radioisótopos

La *Metrología de Radioisótopos* tiene como objetivo fundamental la realización, custodia y transferencia de la unidad de medida de actividad de radionucleidos a través de la preparación y certificación de patrones. Con estos patrones radiactivos se generan otros patrones que son utilizados en la industria y medicina como valores de referencia para la calibración de ciertos equipos.

En Argentina esta tarea fue encomendada al *Laboratorio Metrología de Radioisótopos* (LMR), de la *Comisión Nacional de Energía Atómica* (CNEA). Como Organismo Nacional de Referencia, entiende en lo concerniente a la Metrología de Radioisótopos, con alcance a todo el territorio nacional. También representa a la CNEA ante organismos internacionales de competencia en el tema y promueve la mejora de las mediciones de radiactividad en todo el país.

En el LMR se investigan y desarrollan métodos de medición de radiactividad y de preparación de patrones radiactivos, se efectúan servicios de calibración de instrumentos de medición y de determinación de actividad de radionucleidos en muestras diversas, con su certificación, y se asesora interna y externamente sobre temas de su incumbencia, colaborando en la formación de recursos humanos.

1.2. Objetivo

El objetivo de este trabajo es establecer relaciones de eficiencias que luego sean utilizados como factores de corrección para los distintos análisis por espectrometría gamma de muestras ambientales que se realizan en el Laboratorio Metrología de Radioisótopos, principalmente tierras.

Las muestras recibidas son homogeneizadas previamente por el cliente, por lo que se considera, en el caso de tener algún tipo de contaminación radiactiva, que ésta se encuentra homogéneamente distribuida en el volumen del recipiente. Actualmente, los patrones que se utilizan para realizar las mediciones de estas muestras son fabricados mediante el sembrado de gotas de solución radiactiva en forma de capas discretas (técnica *spiked sources*), los cuales evidentemente no son idénticos a las muestras que se reciben. Es una necesidad entonces establecer correcciones sobre las eficiencias que se calculan sobre el patrón en capas, para poder utilizar luego dichas eficiencias sobre las mediciones de las muestras y cuantificar los posibles contaminantes con una mejor precisión.

Sabiendo que el factor de atenuación y la eficiencia absoluta en el pico de energía plena depende de la energía del rayo gamma, es imprescindible realizar este análisis para distintos radionucleidos que emitan en distintas energías. Por otro lado, la eficiencia de detección también depende del arreglo geométrico y de la densidad de la matriz, por lo que es necesario evaluar distintas matrices y alturas de medición.

Por último, y a modo de verificación, es importante realizar las simulaciones de los distintos patrones en las diferentes geometrías. De esta forma, se puede realizar una caracterización de un modelo de Monte Carlo para estos tipos de fuentes, y además, prever posibles tendencias que puedan presentarse experimentalmente.

CAPÍTULO 2

2.1. Desarrollo experimental

2.1.1. Preparación de los patrones de tierra

- *Muestreo y caracterización*

Las muestras se tomaron en el Centro Atómico Ezeiza, Provincia de Buenos Aires, Argentina ($34^{\circ}49'25''$ S $58^{\circ}34'31''$ O, ver Figura 2.1). El muestreo se realizó extrayendo una porción de entre 5 y 10 cm de profundidad en un terreno plano y abierto, sin edificios o algún tipo de árboles que pudieran producir algún reparo a la zona de muestreo.

Dado que es relevante la remoción de restos de raíces y piedras, entre otros elementos, la tierra se tamizó en una malla de 2 mm. Luego se secó en estufa a 105°C durante toda la noche con la finalidad de extraer la humedad. Por último se homogeneizó (Figura 2.2).



Figura 2.1. Lugar de recolección de las muestras de tierra. Centro Atómico Ezeiza, Provincia de Buenos Aires, Argentina.



Figura 2.2. Tierra tamizada, seca y homogeneizada.

La tierra se caracterizó químicamente por Fluorescencia de Rayos X (Espectrómetro de WDXRF, fluorescencia de Rayos X dispersivo en longitud de onda, equipo S8 Tiger, Bruker, análisis cuantitativo con software Quant Express, Bruker), esto fue realizado por personal del Laboratorio de Fluorescencia de Rayos X del Centro Atómico Constituyentes. La densidad se determinó por gravimetría. Con estos análisis se definieron los parámetros necesarios para la simulación Monte Carlo.

- *Soluciones radiactivas*

A continuación se detallan las distintas soluciones radiactivas pertenecientes al Laboratorio Metrología de Radioisótopos, empleadas en la fabricación de los patrones.

- Solución n.º 61-01-01 de ^{60}Co , correspondiente a la dilución de la solución n.º 61-00 (DuPont, USA) en solución portadora de Co (45 mg $\text{CoCl}_2 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ / 500 ml HCl 0,1N)
- Solución n.º 109-03 de ^{134}Cs , correspondiente a la dilución de la solución n.º 109-00 (Amersham, Inglaterra) en solución portadora de Cs (25 mg CsCl / 500 ml HCl 0,1N)
- Solución n.º 05-06-01 de ^{137}Cs , correspondiente a la dilución de la solución n.º 05-00 (New England Nuclear, USA) en solución portadora de Cs (25 mg CsCl / 500 ml HCl 0,1N)
- Solución n.º 11-04-01 de ^{241}Am , correspondiente a la dilución de la solución n.º 11-00 (LMRI, Francia) en solución portadora de Am (23 mg $\text{La}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ / 500 ml HNO_3 0,1N)

Estas cuatro soluciones fueron calibradas por espectrometría gamma de alta resolución mediante el preparado de fuentes puntuales en mylar (tres fuentes puntuales por cada solución), las cuales fueron medidas en un detector de Germanio Hiper Puro (Detector n.º 2 del Laboratorio Metrología de Radioisótopos, 30% de eficiencia, con preamplificador, marca ORTEC, modelo GEM-30185-S (SV-GEM)) junto con los correspondientes patrones puntuales, pertenecientes al Physikalisch Technische Bundesanstalt (PTB) – Alemania. Para cada fuente y patrón se realizaron series de cinco mediciones a distintas alturas y tiempos. Los espectros fueron obtenidos mediante el programa GammaVision (GammaVision for Windows, model A66-B32 versión 5.10) En la Tabla 2.1 se muestran las fuentes puntuales preparadas con cada solución, los correspondientes patrones puntuales utilizados para la calibración de cada una, las alturas y los tiempos de medición.

Solución	Fuentes puntuales	Tiempo de medición (s)	Patrón	Tiempo de medición (s)	Altura (cm)
61-01-01 de ^{60}Co	68-18	10800	2000- 1385	500	17
	69-18	10800			
	70-18	10800			
109-03 de ^{134}Cs	77-18	10800	2004- 1097	500	17
	78-18	10800			
	79-18	10800			
05-06-01 de ^{137}Cs	62-18	10800	2002- 1742	500	4,5
	63-18	10800			
	64-18	10800			
11-04-01 de ^{241}Am	65-18	10800	2000- 1378	500	4,5
	66-18	10800			
	67-18	10800			

Tabla 2.1. fuentes puntuales preparadas con cada solución, patrones puntuales utilizados, alturas y tiempos de medición.

El programa utilizado para el tratamiento de datos fue WINGELI 1.0.0, desarrollado para automatizar el cálculo de eficiencias y actividad de fuentes medidas en detectores de HPGe mediante software GammaVision, en entorno Windows. Este programa permite obtener los resultados finales de eficiencias de medición, actividad, concentración de actividad de soluciones y cálculo de incertidumbres, incluyendo el tratamiento de outliers. Por cada *Region of Interest* (Región de Interés - ROI) de un pico simple a analizar se obtienen dos valores de áreas netas, identificadas como “S” y “U”, que corresponden a dos modos diferentes de trazado de la línea de base de la ROI.

A continuación se pueden observar las concentraciones de actividad de cada solución a la fecha de referencia de 31/07/2018 12:00 hs UTC-3 (Tabla 2.2)

Solución	Concentración de Actividad (Bq g ⁻¹)
61-01-01 de ⁶⁰ Co	5829 ± 139
109-03 de ¹³⁴ Cs	6324 ± 306
05-06-01 de ¹³⁷ Cs	6286 ± 124
11-04-01 de ²⁴¹ Am	6049 ± 116

Tabla 2.2. Concentraciones de actividad con sus correspondientes incertidumbres asociadas para cada una de las soluciones de radionucleidos.

Una vez calibradas se preparó una solución multigamma (solución n.º 237-00) y una dilución de la misma (solución n.º 237-01), que fueron las utilizadas en la fabricación de los patrones homogéneo y en capas, respectivamente. En la Tabla 2.3 se muestran las masas colocadas de cada solución y las concentraciones de actividad a la fecha de referencia de 31/07/2018 12:00 hs UTC-3 para cada uno de los radionucleidos en las soluciones multigamma preparadas.

Solución	Nucleido	masa colocada (g)	Concentración de Actividad 237-00 (Bq g ⁻¹)	Concentración de Actividad 237-01 (Bq g ⁻¹)
61-01-01	⁶⁰ Co	0,60238 ± 0,00004	1436 ± 34	670 ± 16
109-03	¹³⁴ Cs	0,61717 ± 0,00004	1595 ± 77	744 ± 36
05-06-01	¹³⁷ Cs	0,60649 ± 0,00004	1559 ± 31	727 ± 14
11-04-01	²⁴¹ Am	0,61881 ± 0,00004	1531 ± 29	714 ± 14

Tabla 2.3. Masas colocadas de cada solución y concentraciones de actividad con sus correspondientes incertidumbres asociadas para cada uno de los radionucleidos en las soluciones multigamma 237-00 y 237-01, a la fecha de referencia.

- *Preparación del patrón en capas*

El patrón de tierra en capas se preparó utilizando la técnica *spiked sources*, que es el procedimiento utilizado normalmente en el Laboratorio Metrología de Radioisótopos, y consta de los siguientes pasos: i) una vez preparada y caracterizada la tierra, ésta se colocó en un recipiente cilíndrico de polipropileno de 7,5 cm alto y 7 cm de diámetro (Figura 2.3) para poder determinar la cantidad a utilizar; ii) esta cantidad luego fue retirada del recipiente y dividida en cinco partes iguales que serían las futuras capas, las cuales fueron pesadas con el fin de determinar su similitud en masa; iii) se colocó la primer capa de tierra dentro del recipiente y se depositaron sobre ésta gotas de la solución 237-01, que se encontraba contenida en un *ampitt* (picnómetro, pipeta plástica tipo Pasteur, de pico capilar largo.); iv) se dejó evaporar suavemente bajo un epirradiador, bajo campana; v) una vez secas las gotas, se colocó sobre ellas una nueva capa de tierra y se repitieron los pasos iii) y iv). Esto se realizó de forma sucesiva, colocando solución radiactiva en cada una de las primeras cuatro capas, mientras que sobre la última capa no se colocó solución. El sembrado de las mismas se

puede observar en la Figura 2.4. Las cinco capas de tierra fueron de aproximadamente 1,2 cm de espesor. En la parte superior se colocó un telgopor del diámetro de la boca del recipiente, para inmovilizar el contenido, evitando así posibles movimientos de la tierra, y por ende, de las capas.



Figura 2.3. Recipiente cilíndrico de polipropileno, en el cual se prepararon los patrones de tierra.



Figura 2.4. Las cuatro capas de siembra de la solución radiactiva en el patrón de tierra preparado en capas. De izquierda a derecha, de abajo hacia arriba: capa 1, capa 2, capa 3 y capa 4.

La masa total de la solución 237-01 colocada en este patrón fue $0,73726 \pm 0,00004$ g. La actividad a la fecha de referencia de 31/07/2018 12:00 hs UTC-3 obtenida para cada nucleido en el patrón en capas se muestra en la Tabla 2.4:

Nucleido	Actividad (Bq)
^{60}Co	494 ± 12
^{134}Cs	548 ± 27
^{137}Cs	536 ± 12
^{241}Am	526 ± 10

Tabla 2.4. Actividad de cada nucleido e incertidumbres asociadas en el patrón de tierra preparado en capas, a la fecha de referencia.

- *Preparación del patrón homogéneo*

Un procedimiento similar al descrito por Shakhashiro *et ál.* [9] se utilizó para sembrar cada contenedor con la solución multigamma. Este procedimiento presenta varias ventajas, ya que su homogeneidad puede verificarse directamente mediante espectroscopía gamma, cuenta con una estabilidad de varios meses, la cual fue verificada por M. Mejuto *et ál* [10] mediante mediciones repetidas durante un período de aproximadamente seis meses después de la preparación, y además minimiza la posibilidad de contaminación del área y del personal en el trabajo por partículas de tierra radiactiva suspendidas, ya que para el caso de la preparación de varios estándares simultáneamente no sería necesario transferir el material enriquecido de un contenedor grande a otros más pequeños. Dicho procedimiento fue puesto en conocimiento por el personal del Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes (LMRI) del Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT), Madrid, España, al realizar una visita a sus instalaciones en Junio de 2018.

Este método de inmersión utilizado para sembrar el recipiente consta de los siguientes pasos: i) Una vez preparada y caracterizada la tierra, se envasó en un recipiente cilíndrico de polipropileno con similares medidas al utilizado para el patrón de tierra en capas. Este recipiente se colocó sobre una bandeja de aluminio para recoger cualquier material derramado durante la manipulación; ii) en una botella plástica se colocaron aproximadamente 50 ml de metanol y $0,81049 \pm 0,00004$ g de la solución 237-00; iii) la mezcla se aplicó sobre la tierra con una pipeta de 1 ml, mezclando manualmente con una varilla de vidrio entre adiciones; iv) la botella vacía, la pipeta y la varilla fueron lavadas con alícuotas de metanol, que fueron añadidas a los recipientes; v) la botella vacía y todos los materiales utilizados fueron medidos por espectrometría gamma, no encontrándose actividad residual; vi) la suspensión obtenida se evaporó suavemente bajo un epirradiator con agitación hasta un peso constante; y vii) el recipiente fue tapado y sellado con un pegamento de plástico rígido. M. Mejuto *et ál* [10] comprobaron previamente que no existen procesos de interacción entre el sólido y la solución de ácido-metanol, ya que la composición química del sólido después de la evaporación de la solución antes mencionada permaneció inalterada. En consecuencia, este

protocolo es también útil para preparar patrones con otros radionucleidos, siempre y cuando no haya interacciones entre la solución radiactiva y la matriz, ni volatilización de los radionucleidos. En la Figura 2.5 puede observarse el patrón durante y al finalizar su preparación.



Figura 2.5. Patrón homogéneo durante su preparación (izquierda) y al finalizar la misma (derecha).

La actividad a la fecha de referencia de 31/07/2018 12:00 hs UTC-3 obtenida para cada nucleido en el patrón homogéneo se muestra en la Tabla 2.5:

Nucleido	Actividad (Bq)
^{60}Co	1164 ± 28
^{134}Cs	1293 ± 63
^{137}Cs	1264 ± 25
^{241}Am	1164 ± 24

Tabla 2.5. Actividad de cada nucleido e incertidumbres asociadas en el patrón de tierra homogéneo, a la fecha de referencia.

2.1.2. Preparación de los patrones de harina

- *Muestra*

La harina de trigo utilizada en la fabricación de los patrones es una harina de trigo comercial, tipo 000, la cual fue comprada en un supermercado.

- *Soluciones radiactivas utilizadas para el patrón en capas*

Se detallan a continuación las dos soluciones radiactivas pertenecientes al Laboratorio Metrología de Radioisótopos, empleadas en la fabricación del patrón en capas.

- Solución n.º 164-02-01 de ^{60}Co , correspondiente a la dilución de la solución n.º 164-00 (Eckert & Ziegler Isotope Products, USA) en solución portadora de Co ($45 \text{ mg CoCl}_2 \cdot 6 \text{ H}_2\text{O} / 500 \text{ ml HCl } 0,1\text{N}$)
- Solución n.º 194-00 de ^{241}Am (Eckert & Ziegler Isotope Products, USA), AmCl_3 en HCl 0,1 N

La solución de ^{60}Co fue recalibrada por espectrometría gamma de alta resolución mediante el preparado de tres fuentes puntuales en mylar (01-19, 02-19 y 03-19), las cuales fueron medidas en el mismo detector de HPGe descrito anteriormente junto con el patrón puntual 2000-1385, perteneciente al Physikalisch Technische Bundesanstalt (PTB) – Alemania. Para cada fuente y patrón se realizaron series de cinco mediciones a 4,5 cm. El tiempo de medición de las fuentes fue de 7200 segundos, mientras que el del patrón fue de 150 segundos.

La solución de ^{241}Am fue recalibrada mediante el sistema de Triple-to-Double Coincidence Ratio (TDCR). Para ello se prepararon un blanco y tres viales de vidrio de 22 ml, en los cuales se colocó 10 ml del líquido centellador Ultima Gold AB (UGAB). En él se depositó la solución de ^{241}Am . Al tratarse de un procedimiento para determinar en forma absoluta la concentración de actividad de una solución, no se utilizaron patrones.

El programa utilizado para el tratamiento de datos fue WINGELI 1.0.0, descrito anteriormente.

A continuación se informan las concentraciones de actividad de cada solución a la fecha de referencia de 31/01/2019 12:00 hs UTC-3 (Tabla 2.6)

Solución	Concentración de Actividad (Bq g^{-1})
164-02-01 de ^{60}Co	47359 ± 739
194-00 de ^{241}Am	352787 ± 4939

Tabla 2.6. Concentraciones de actividad con sus correspondientes incertidumbres asociadas para cada una de las soluciones de radionucleidos.

Conociendo los valores obtenidos en las recalibraciones se preparó una solución de ^{60}Co y ^{241}Am (solución n.º 241-00), que fue la utilizada en la fabricación del patrón de harina en capas. En la Tabla 2.7 se muestran las masas colocadas de cada solución y las concentraciones de actividad a la fecha de referencia de 31/01/2019 12:00 hs UTC-3 para cada uno de los radionucleidos.

Solución	Nucleido	masa colocada (g)	Concentración de Actividad 241-00 (Bq g^{-1})
164-02-01	^{60}Co	$0,06747 \pm 0,00004$	1595 ± 25
194-00	^{241}Am	$0,01688 \pm 0,00004$	2973 ± 42

Tabla 2.7. Masas colocadas de cada solución y concentraciones de actividad con sus correspondientes incertidumbres asociadas para cada uno de los radionucleidos en la solución 241-00, a la fecha de referencia.

- *Preparación del patrón en capas*

El patrón de harina en capas se preparó de la misma manera que el patrón de tierra en capas, utilizando la técnica *spiked sources*, siguiendo los mismos pasos de dicho procedimiento. El recipiente cilíndrico utilizado también tenía similares características que dicho patrón. Las cinco capas de tierra fueron de aproximadamente 1,2 cm de espesor. En la parte superior se colocó un telgopor del diámetro de la boca del recipiente, para inmovilizar el contenido, evitando así posibles movimientos de la harina, y por ende, de las capas.

La masa total de la solución 241-00 colocada fue $1,30208 \pm 0,00004$ g. La actividad a la fecha de referencia de 31/01/2019 12:00 hs UTC-3 obtenida para cada nucleido en el patrón de harina en capas se muestra en la Tabla 2.8:

Nucleido	Actividad (Bq)
^{60}Co	2077 ± 32
^{241}Am	3871 ± 54

Tabla 2.8. Actividad de cada nucleido e incertidumbres asociadas en el patrón de harina en capas, a la fecha de referencia.

- *Soluciones radiactivas utilizadas para el patrón homogéneo*

Se detallan a continuación las dos soluciones radiactivas pertenecientes al Laboratorio Metrología de Radioisótopos, empleadas en la fabricación del patrón en capas.

- Solución n.º 164-02-01-01 de ^{60}Co , correspondiente a la dilución de la solución n.º 164-00 (Eckert & Ziegler Isotope Products, USA) en solución portadora de Co (45 mg $\text{CoCl}_2 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ / 500 ml HCl 0,1N)
- Solución n.º 11-04-02 de ^{241}Am , correspondiente a la dilución de la solución n.º 11-00 (LMRI, Francia) en solución portadora de Am (23 mg $\text{La}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ / 500 ml HNO_3 0,1N)

La solución 164-02-01-01 de ^{60}Co fue una dilución de la solución 164-02-01, recalibrada para el preparado del patrón de harina en capas, mientras que la calibración de la solución 11-04-02 de ^{241}Am se realizó mediante las mismas mediciones de fuentes y patrón puntuales que las de la solución 11-04-01, ya que ambas provienen de la misma solución madre 11-04.

A continuación se informan las concentraciones de actividad de cada solución a la fecha de referencia de 31/01/2019 12:00 hs UTC-3 (Tabla 2.9)

Solución	Concentración de Actividad (Bq g ⁻¹)
164-02-01-01 de ⁶⁰ Co	29749 ± 464
11-04-02 de ²⁴¹ Am	7258 ± 139

Tabla 2.9. Concentraciones de actividad con sus correspondientes incertidumbres asociadas para cada una de las soluciones de radionucleidos.

Sabiendo estos valores se prepararon dos soluciones conteniendo ⁶⁰Co y ²⁴¹Am (soluciones n.º 239-00 y 240-00), que fueron las utilizadas en la fabricación del patrón de harina homogéneo. En las Tablas 2.10 y 2.11 se muestran las masas colocadas de cada solución y las concentraciones de actividad a la fecha de referencia de 31/01/2019 12:00 hs UTC-3, para cada uno de los radionucleidos en las soluciones 239-00 y 240-00 respectivamente.

Solución	Nucleido	masa colocada (g)	Concentración de Actividad 239-00 (Bq g ⁻¹)
164-02-01-01	⁶⁰ Co	0,12991 ± 0,00004	3836 ± 60
11-04-02	²⁴¹ Am	0,34250 ± 0,00004	2468 ± 47

Tabla 2.10. Masas colocadas de cada solución y concentraciones de actividad con sus correspondientes incertidumbres asociadas para cada uno de los radionucleidos en la solución 239-00, a la fecha de referencia.

Solución	Nucleido	masa colocada (g)	Concentración de Actividad 240-00 (Bq g ⁻¹)
164-02-01-01	⁶⁰ Co	0,13042 ± 0,00004	9069 ± 141
11-04-02	²⁴¹ Am	0,29748 ± 0,00004	5048 ± 97

Tabla 2.11. Masas colocadas de cada solución y concentraciones de actividad con sus correspondientes incertidumbres asociadas para cada uno de los radionucleidos en la solución 240-00, a la fecha de referencia.

- *Preparación del patrón homogéneo*

El patrón de harina en capas se preparó de la misma manera que el patrón de tierra homogéneo, con un procedimiento similar al descrito por Shakhashiro *et al.* [9], en un recipiente contenedor de características similares a éste.

La masa total de la solución 239-00 colocada fue 0,95710 ± 0,00004 g, mientras que la masa de la solución 240-00 fue 0,31784 ± 0,00004 g. La actividad a la fecha de referencia de 31/01/2019 12:00 hs UTC-3 obtenida para cada nucleido en el patrón de harina en capas se muestra en la Tabla 2.12:

Nucleido	Actividad (Bq)
⁶⁰ Co	6554 ± 102
²⁴¹ Am	3966 ± 76

Tabla 2.12. Actividad de cada nucleido e incertidumbres asociadas en el patrón de harina homogéneo, a la fecha de referencia.

2.1.3. Medición de los patrones

Las mediciones se realizaron en el mismo detector de HPGe que se utilizó para la calibración de las soluciones radiactivas mediante la medición de fuentes puntuales.

Los patrones de tierra fueron medidos en contacto con el detector, y a 2, 4 y 17 cm de éste. Esta última posición se utilizó para verificar las correcciones por el efecto de suma por coincidencia, según el método de S.I. Kafala [5]. Se realizaron series de veinte mediciones, excepto para los patrones de tierra a 2 cm, y para el patrón de tierra en capas a 17 cm, para los cuales se realizaron series de cinco mediciones.

Los patrones de harina sólo fueron medidos a 4 cm del detector, ya que no fue necesario realizar correcciones por el efecto de suma por coincidencia. No se realizaron mediciones más cerca del detector, ya que la intención era evaluar las diferencias en eficiencias con el patrón de tierra solamente a 4 cm.

Los patrones homogéneos de tierra y harina fueron previamente agitados de forma manual, y colocados en una TURBULA® mezcladora durante aproximadamente treinta minutos a 30 rpm, con el fin de mantener la homogeneización. Ésta se comprobó mediante sucesivas mediciones en distintas posiciones, verificando que dieran resultados similares.

En la Figura 2.6 se muestra el detector de HPGe utilizado:



Figura 2.6. Detector de HPGe utilizado para las mediciones, perteneciente al Laboratorio Metrología de Radioisótopos, Centro Atómico Ezeiza.

En la Figura 2.7 se muestran las diferentes posiciones de medición, y los soportes que se usaron para apoyar los patrones a diferentes alturas:



Figura 2.7. Arriba-izquierda: mediciones en contacto; arriba-derecha: mediciones a 2 cm del detector; abajo-izquierda: mediciones a 4 cm del detector; abajo-derecha: mediciones a 17 cm del detector.

En la Tabla 2.13 se detallan los tiempos de medición (en segundos) empleados para las diferentes geometrías en los patrones de tierra:

Posición	Patrón de tierra en capas	Patrón de tierra homogéneo
En contacto	7200	3600
A 2 cm	10000	6000
A 4 cm	15500	7200
A 17 cm	5000	3600

Tabla 2.13. Tiempos de medición, en segundos, de los patrones de tierra a distintas geometrías

Las mediciones de los patrones de harina fueron de 3600 segundos.

2.1.4. Medición de fondos espectrales

Se realizaron series de cinco mediciones de fondos espectrales (sin colocar ningún tipo de fuente) de 3600, 5000, 6000, 7200, 10000 y 15500 segundos con el fin de determinar posibles cuentas en las áreas de los picos provenientes de una posible contaminación de una parte del detector. Estas cuentas fueron luego restadas a los correspondientes picos.

2.1.5. Análisis de datos

Los espectros fueron obtenidos mediante el programa GammaVision y analizados con el sistema WINGELI, ya descrito anteriormente. Se realizaron corridas para cada espectro y radionucleido, de forma independiente. De los resultados arrojados por este programa se tomaron solamente las áreas netas y sus incertidumbres. Las energías analizadas en cada radionucleido se informan en la Tabla 2.14. Se eligieron aquellas con mayor probabilidad de emisión, con el fin de obtener la mayor cantidad de cuentas en esos picos. No fue necesario realizar correcciones por decaimiento radiactivo durante las mediciones, ya que los tiempos de semidesintegración de estos nucleidos son lo suficientemente largos con respecto a los de medición, por lo que este decaimiento se consideró despreciable. Los datos bibliográficos fueron obtenidos de la base de datos nucleares perteneciente al Laboratorio Nacional Henri Becquerel, Francia [3].

Nucleido	Energía (keV)	Probabilidad de emisión	Tiempo de semidesintegración (días)
^{60}Co	1332,492	0,99826	1925,27
^{134}Cs	604,72	0,9763	754,02
^{137}Cs	661,657	0,8499	10975,76
^{241}Am	59,5409	0,3592	158007,15

Tabla 2.14. Energías analizadas en cada radionucleido, junto con sus probabilidades de emisión y los tiempos de semidesintegración, obtenidos de la base de datos nucleares perteneciente al Laboratorio Nacional Henri Becquerel, Francia.

En cada archivo de salida se obtuvieron dos valores de áreas.

De esta manera se obtuvo la siguiente cantidad de archivos de salida, conteniendo los datos de las áreas de los picos

- Para las mediciones en contacto, para cada uno de los patrones de tierra, veinte archivos para cada radionucleido.
- Para las mediciones a 2 cm del detector, para cada uno de los patrones de tierra, cinco archivos para cada radionucleido.
- Para las mediciones a 4 cm del detector, para cada uno de los patrones de tierra y de harina, veinte archivos para cada radionucleido.

- Para las mediciones a 17 cm del detector, para el patrón de tierra homogéneo, veinte archivos para cada radionucleido; para el patrón de tierra en capas cinco archivos para cada radionucleido

Todos los valores de áreas netas y sus incertidumbres asociadas fueron recopilados en hojas de datos de Microsoft Excel 2010, para realizar luego los cálculos de eficiencia utilizando la ecuación (13), conociendo las actividades de los nucleidos en cada uno de los patrones a su fecha de medición, los tiempos de medición y las probabilidades de emisión de los fotones.

2.2. Simulaciones Monte Carlo

Se realizó la simulación de los patrones de tierra en contacto y a 4 cm del detector, en consonancia con las mediciones experimentales. La simulación fue realizada por especialistas en simulaciones del LMR utilizando el código PENELOPE, módulo PENMAIN.

Para el caso de los patrones en capas las gotas fueron representadas por puntos equidistantes, tal como muestra la Figura 2.8:

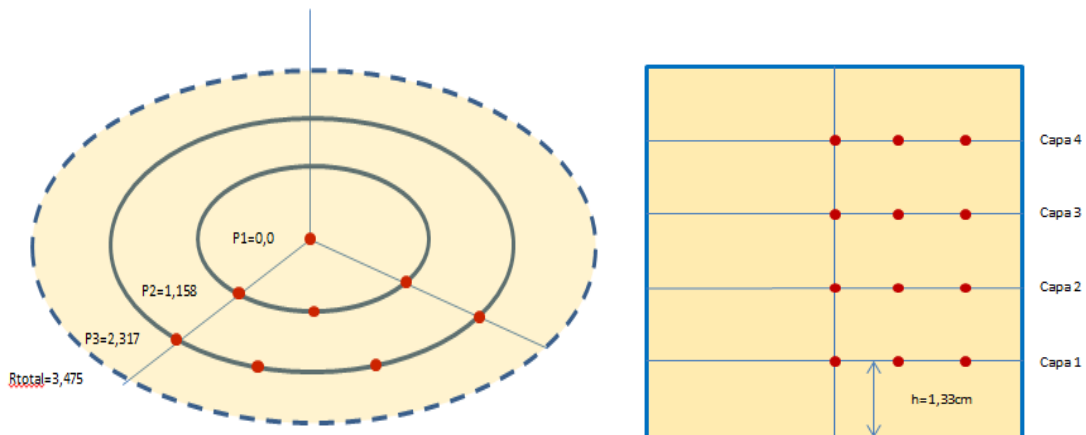


Figura 2.8. Representación gráfica de los patrones en capas, tal como se construyó en la simulación. Se muestran las medidas entre cada una de las gotas.

En la Figura 2.9 podemos observar la imagen que reconstruye el programa de simulación con los parámetros geométricos ingresados. Gracias a los colores de la imagen quedan evidenciados los materiales que conforman el detector y la fuente.

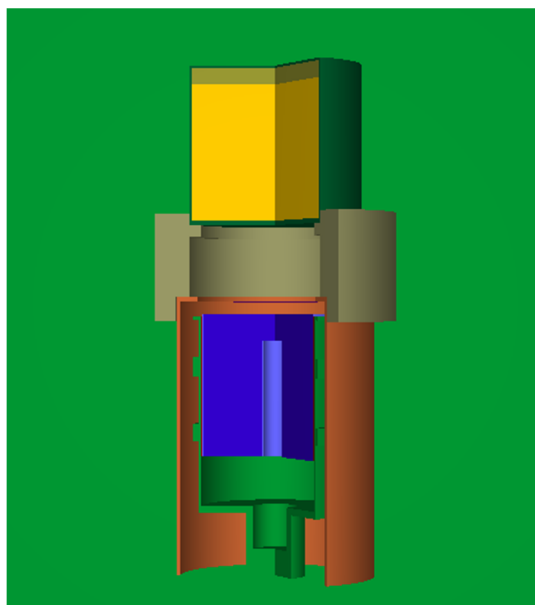


Figura 2.9. Geometría simulada con PENELOPE, obtenido de las simulaciones realizadas por la Dra. Virginia Peyrés en CIEMAT, España.

La caracterización del detector se realiza en base a las especificaciones de dimensiones y materiales provistas por el fabricante del detector, y es necesaria para evaluar los resultados de la simulación con los resultados obtenidos experimentalmente. De esta manera se evalúan las diferencias existentes para luego ajustar el modelo de la simulación, hasta lograr las menores diferencias posibles. Es muy común que las dimensiones del cristal informadas por el fabricante difieran de hasta el 10% de las reales, es por eso que se pueden obtener diferencias importantes entre la simulación y los resultados experimentales. En el presente trabajo ya se cuenta con el detector caracterizado por mediciones experimentales anteriores de fuentes puntuales, sin embargo, servirá de ejercicio para determinar posibles diferencias al simular y medir experimentalmente fuentes volumétricas en diferentes matrices.

Por otro lado, es importante citar el proyecto EUROMET 428, donde se propuso examinar los resultados de la transferencia de eficiencia conociendo la eficiencia de una fuente puntual de referencia. Para ello, se utilizaron diferentes métodos, como la simulación Monte Carlo. El ejercicio comparó la aplicación de estos métodos con los resultados experimentales, con el fin de determinar las limitaciones de uso de estos programas, en función de la precisión requerida. Se realizaron cálculos de la eficiencia de un detector de HPGe para una fuente puntual y para tres viales cilíndricos con diferentes matrices, colocados directamente sobre el detector. Los resultados mostraron que las desviaciones entre las simulaciones y las eficiencias medidas experimentalmente estuvieron en su mayor parte dentro del 10%. De esta manera se demostró que estos códigos no pueden utilizarse directamente con fines metrológicos, sin embargo, la mayoría de ellos pueden ser utilizados para mediciones de rutina cuando las incertidumbres de eficiencia del 5 al 10% son aceptables [11].

CAPÍTULO 3

3.1. Resultados experimentales

3.1.1. Caracterización de la tierra

La caracterización de la tierra fue utilizada para las simulaciones Monte Carlo, ya que además de la caracterización del detector, es necesario caracterizar la matriz y el recipiente de los patrones, junto con todas sus medidas. En las Tablas 3.1 y 3.2 se muestra la composición elemental, como resultado de la caracterización de la tierra realizada por Fluorescencia de Rayos X. La Tabla 3.1 corresponde a los elementos mayoritarios, la Tabla 3.2 muestra los elementos minoritarios y trazas.

Elemento	Concentración (%)
Si	27 ± 1
Al	$7,5 \pm 0,4$
Fe	$3,3 \pm 0,2$
Ca	$2,0 \pm 0,1$
K	$1,8 \pm 0,1$
Na	$0,9 \pm 0,1$
Mg	$0,66 \pm 0,07$
Ti	$0,46 \pm 0,05$

Tabla 3.1. Composición elemental de la tierra, en porcentajes, con sus correspondientes incertidumbres. Elementos mayoritarios.

Elemento	Concentración (mg kg ⁻¹)
Mn	778 ± 78
P	660 ± 65
Ba	653 ± 65
S	420 ± 40
Sr	245 ± 25
Zr	220 ± 22
Cl	140 ± 15
V	105 ± 10

Elemento	Concentración (mg kg ⁻¹)
Rb	90 ± 9
Zn	82 ± 8
Cu	39 ± 8
Ni	24 ± 5
Br	21 ± 4
Cr	21 ± 4
Ga	16 ± 3
As	14 ± 3

Tabla 3.2. Composición elemental de la tierra, en porcentajes, con sus correspondientes incertidumbres. Elementos minoritarios y trazas.

La densidad de la tierra obtenida por gravimetría fue $1,29 \text{ g cm}^{-3}$

3.1.2. Espectrometría gamma de alta resolución

A continuación se muestran los espectros obtenidos con el programa GammaVision para los diferentes patrones en las distintas geometrías (Figuras 3.1 a 3.10). A modo informativo, en el primer espectro se indican los picos que fueron analizados en cada radionucleido.

Nota: se presenta aquí un espectro de cada serie de medición, a modo de muestra.

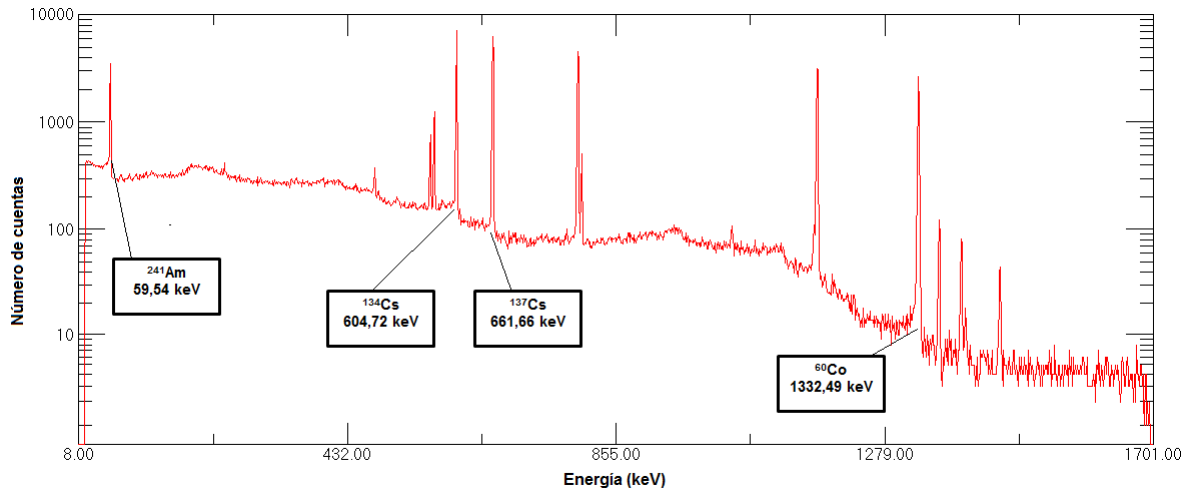


Figura 3.1. Espectro correspondiente a la medición del patrón de tierra homogéneo, en contacto con el detector. Se indican allí los picos de interés.

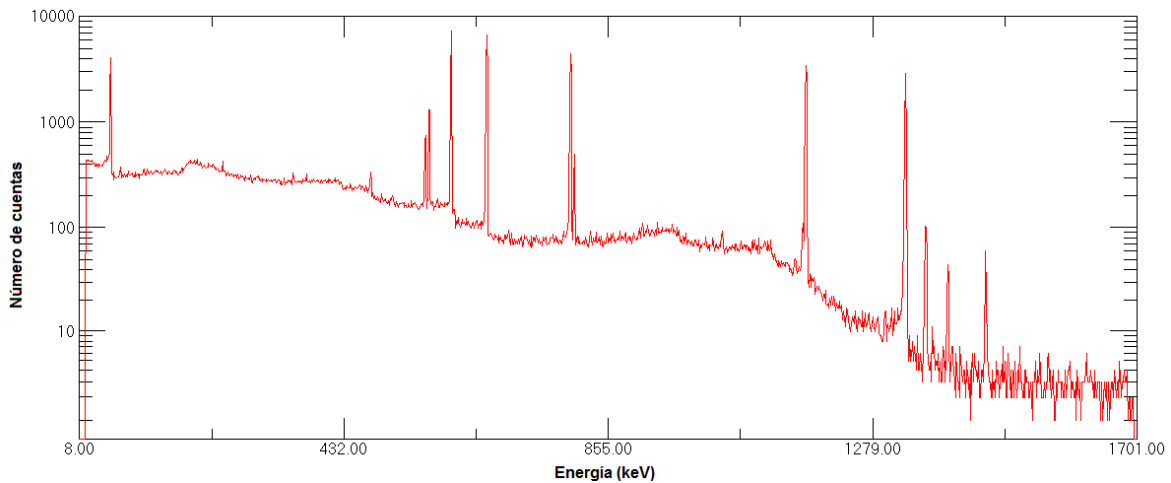


Figura 3.2. Espectro correspondiente a la medición del patrón de tierra homogéneo, a 2 cm del detector.

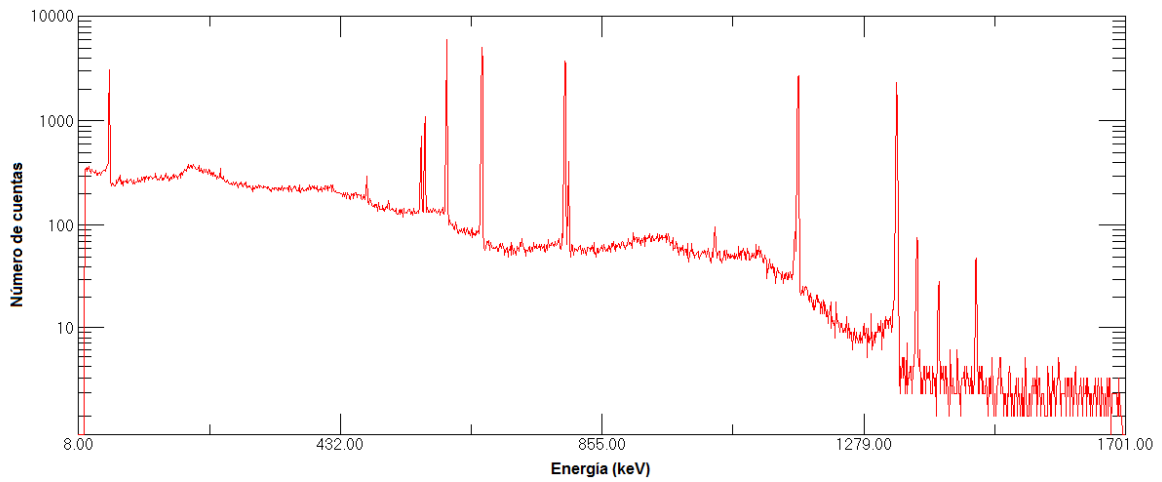


Figura 3.3. Espectro correspondiente a la medición del patrón de tierra homogéneo, a 4 cm del detector.

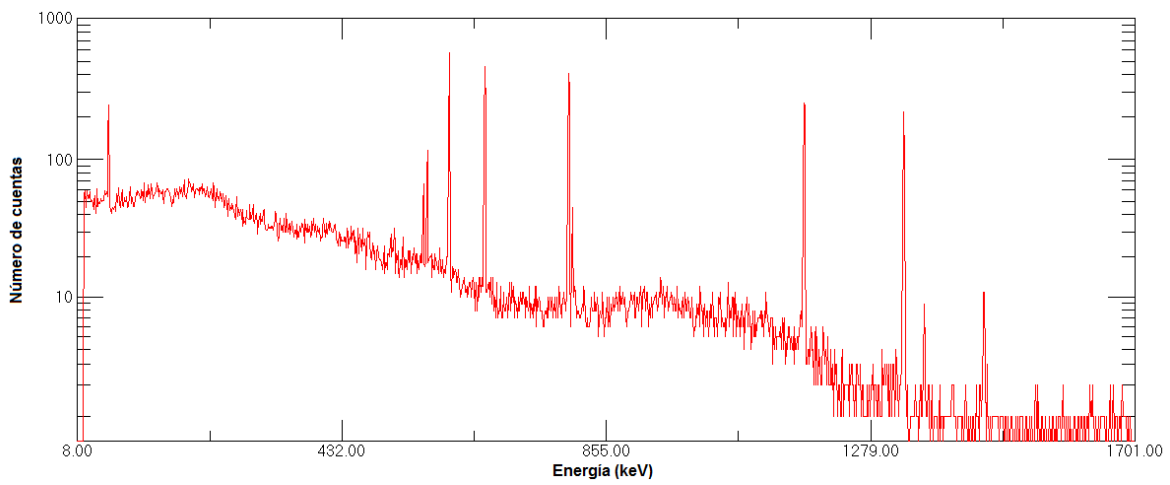


Figura 3.4. Espectro correspondiente a la medición del patrón de tierra homogéneo, a 17 cm del detector.

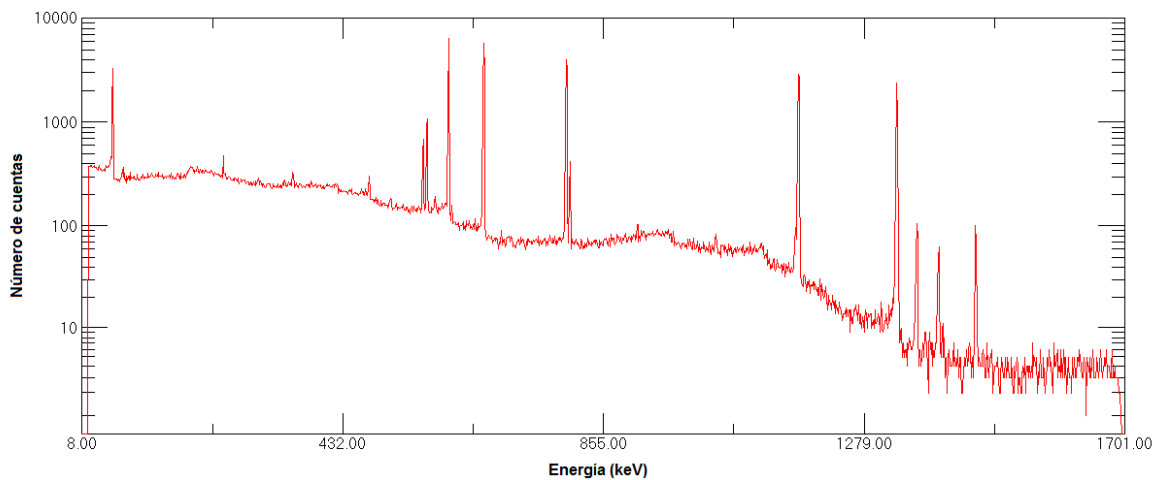


Figura 3.5. Espectro correspondiente a la medición del patrón de tierra en capas, en contacto con el detector.

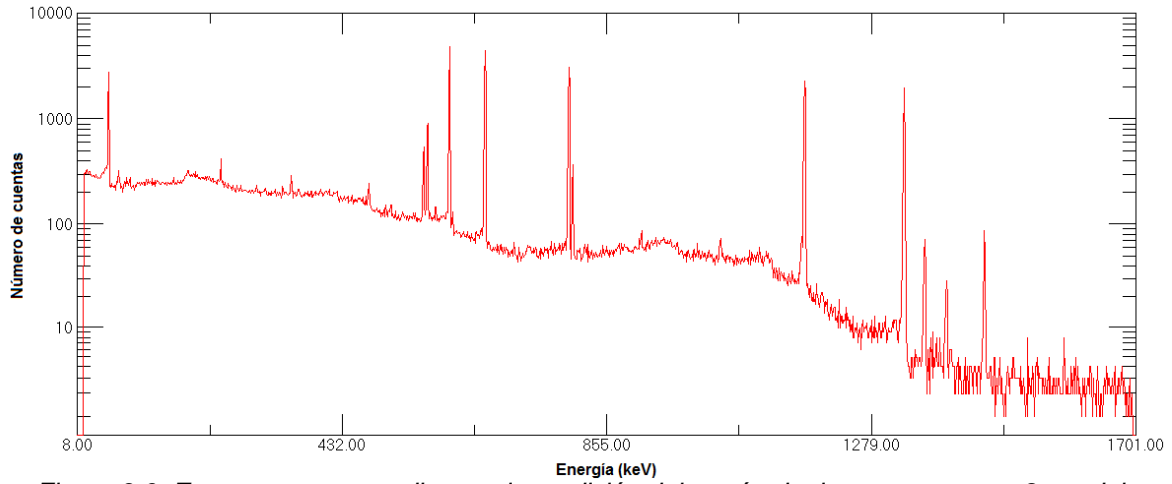


Figura 3.6. Espectro correspondiente a la medición del patrón de tierra en capas, a 2 cm del detector.

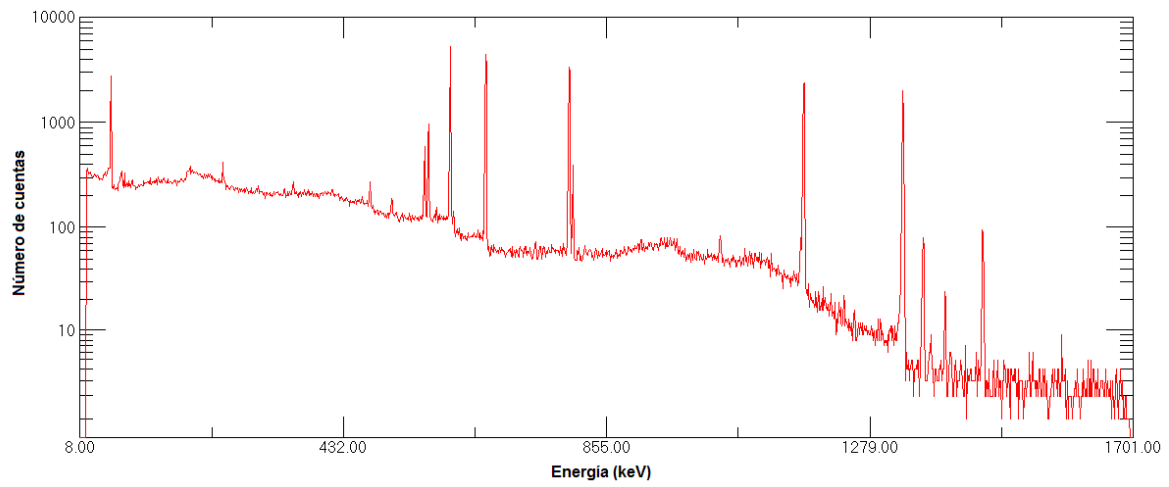


Figura 3.7. Espectro correspondiente a la medición del patrón de tierra en capas, a 4 cm del detector.

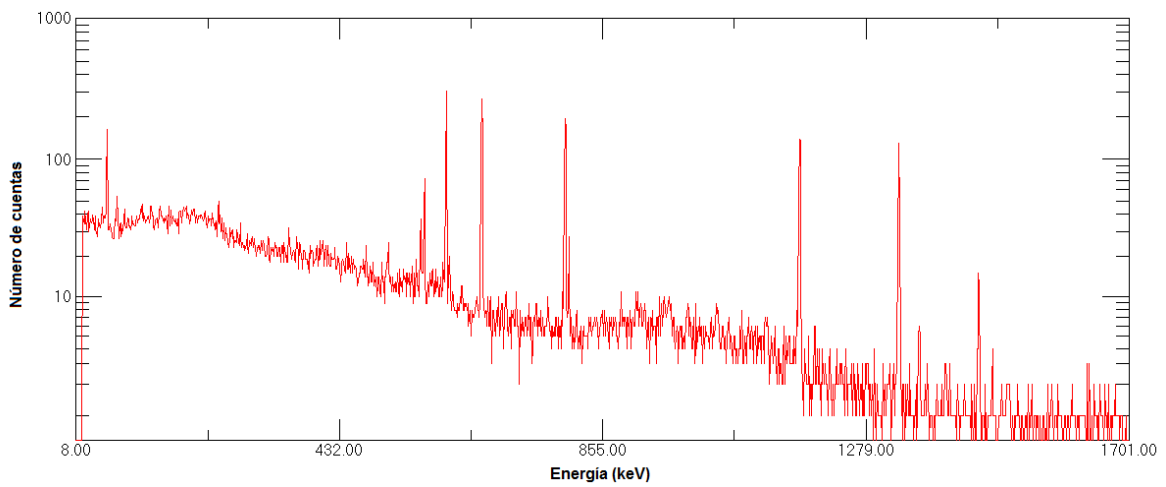


Figura 3.8. Espectro correspondiente a la medición del patrón de tierra en capas, a 17 cm del detector.

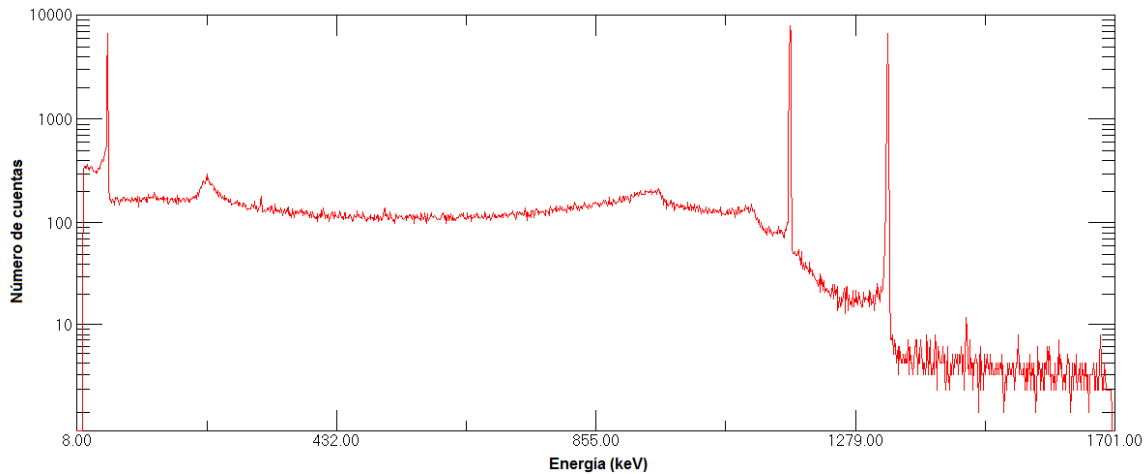


Figura 3.9. Espectro correspondiente a la medición del patrón de harina homogéneo, a 4 cm del detector.

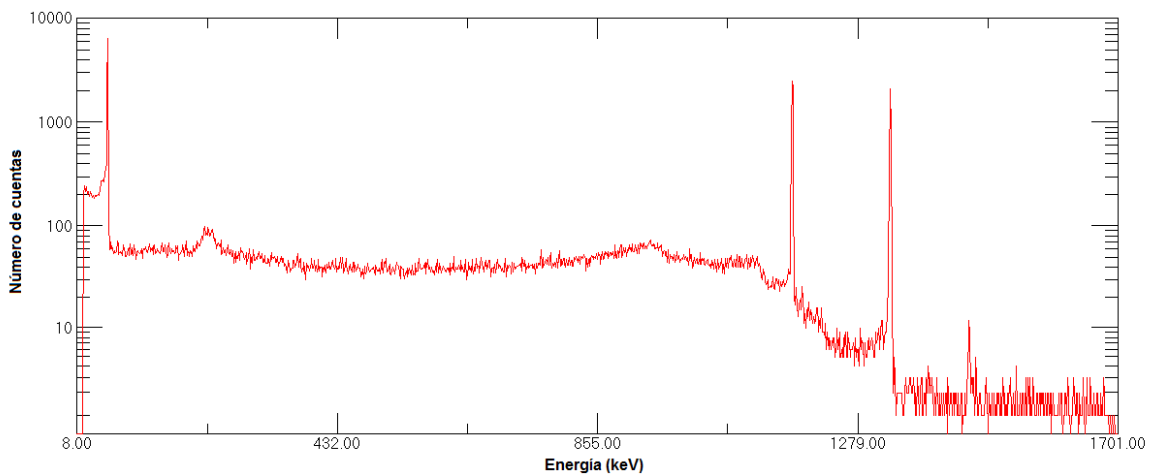


Figura 3.10. Espectro correspondiente a la medición del patrón de harina en capas, a 4 cm del detector.

Cuando se realiza una inspección visual del espectro se verifican ciertas características tales como la forma general, presencia de ruido, distribuciones Compton, simetría de los picos, pérdidas por tiempo muerto y cantidad de canales especificado en la ficha técnica del detector. Como se puede observar, las características de los espectros es completamente normal: no hay presencia de ruido electrónico mayor al normal y los picos son simétricos y bien definidos. Los tiempos muertos no superaron en ningún caso el 1,2% y la cantidad de canales fue la correcta. Puede observarse que el borde Compton es más alto en las mediciones más cercanas al detector, algo completamente previsible, sin detectarse ninguna anomalía en ninguna medición.

3.1.3. Áreas netas

En las Figuras 3.11 a 3.18 se pueden observar los gráficos correspondientes a las áreas netas obtenidas para cada nucleido en cada medición, resultado de los promedios de las áreas S y U informadas en cada archivo de salida del programa WINGELI. Puede observarse en cada gráfico su evolución a lo largo de las mediciones.

Aclaración: a las áreas del ^{137}Cs se les tuvo que restar el fondo correspondiente.

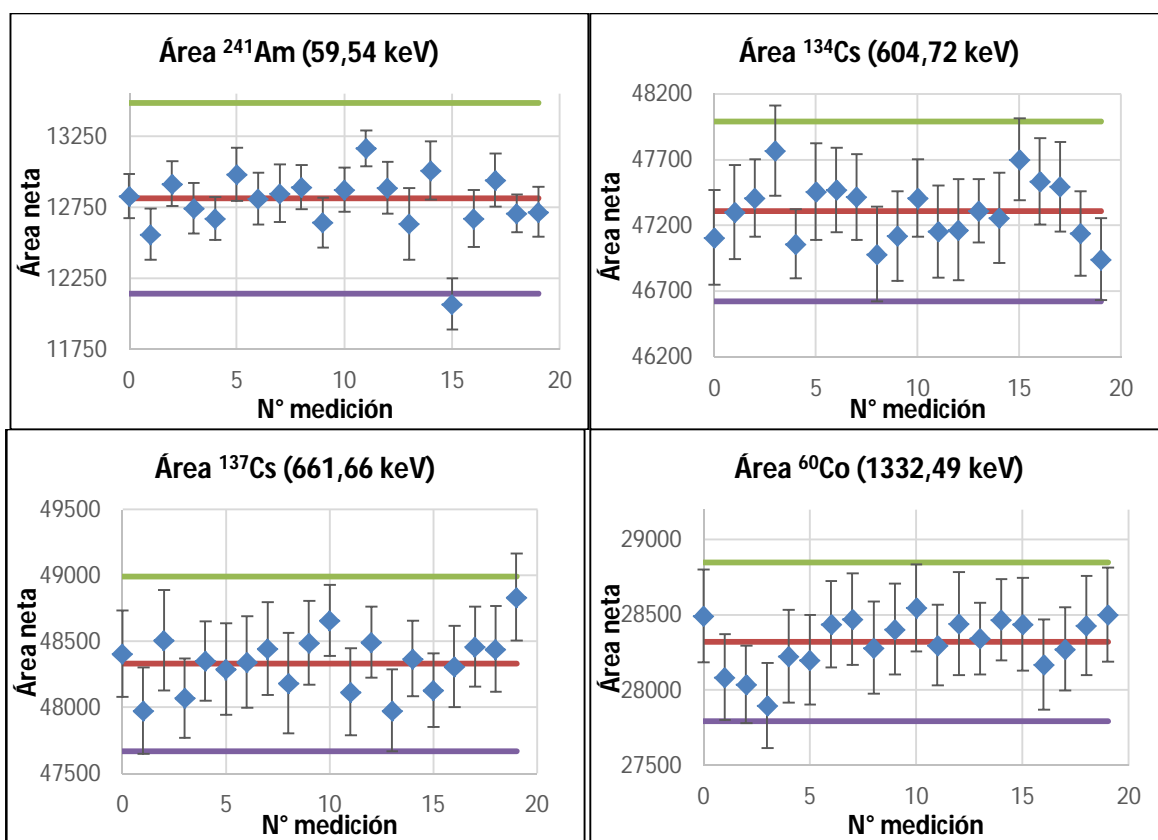


Figura 3.11. Áreas netas de cada medición para el patrón homogéneo de tierra, medido en contacto con el detector. Arriba-izquierda: ^{241}Am a 59,54 keV; arriba-derecha: ^{134}Cs a 604,72 keV; abajo-izquierda: ^{137}Cs a 661,66 keV; abajo-derecha: ^{60}Co a 1332,49 keV. La línea roja corresponde a la media, la línea superior verde a la media + 3 sigma, y la azul inferior a la media - 3 sigma.

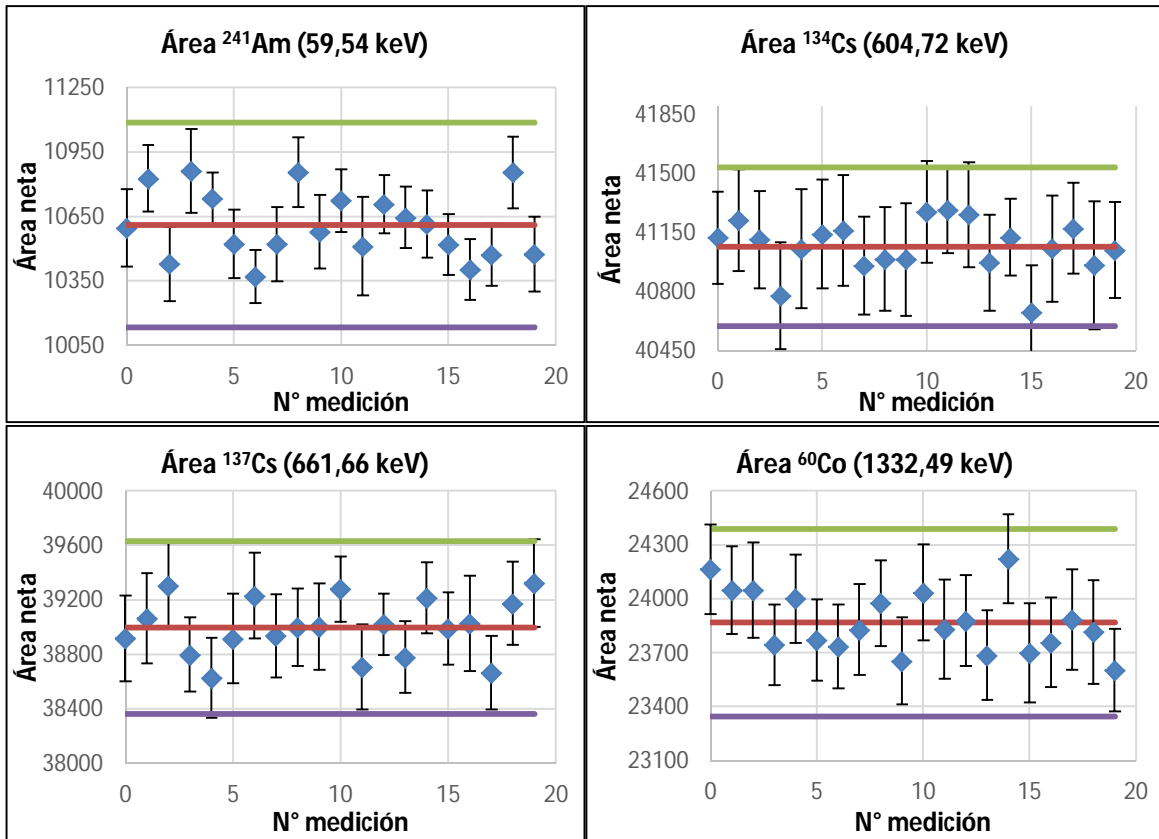
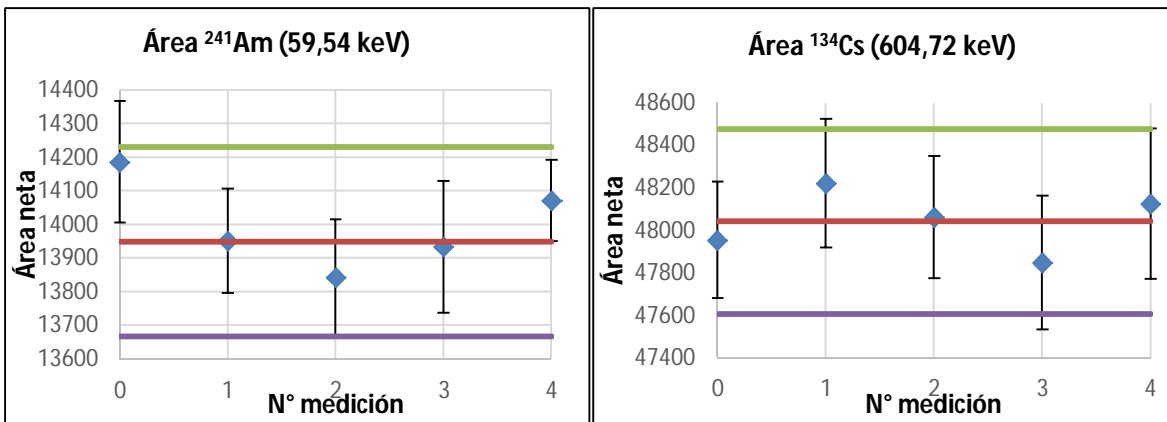


Figura 3.12. Áreas netas de cada medición para el patrón de tierra en capas, medido en contacto con el detector. Arriba-izquierda: ^{241}Am a 59,54 keV; arriba-derecha: ^{134}Cs a 604,72 keV; abajo-izquierda: ^{137}Cs a 661,66 keV; abajo-derecha: ^{60}Co a 1332,49 keV. La línea roja corresponde a la media, la línea superior verde a la media + 3 sigma, y la azul inferior a la media - 3 sigma.



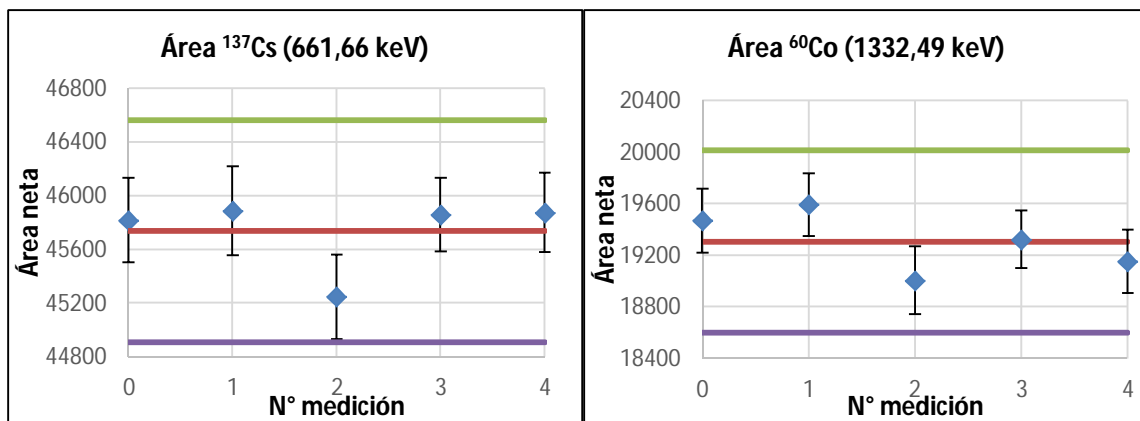


Figura 3.13. Áreas netas de cada medición para el patrón homogéneo de tierra, medido a 2 cm del detector. Arriba-izquierda: ²⁴¹Am a 59,54 keV; arriba-derecha: ¹³⁴Cs a 604,72 keV; abajo-izquierda: ¹³⁷Cs a 661,66 keV; abajo-derecha: ⁶⁰Co a 1332,49 keV. La línea roja corresponde a la media, la línea superior verde a la media + 3 sigma, y la azul inferior a la media - 3 sigma.

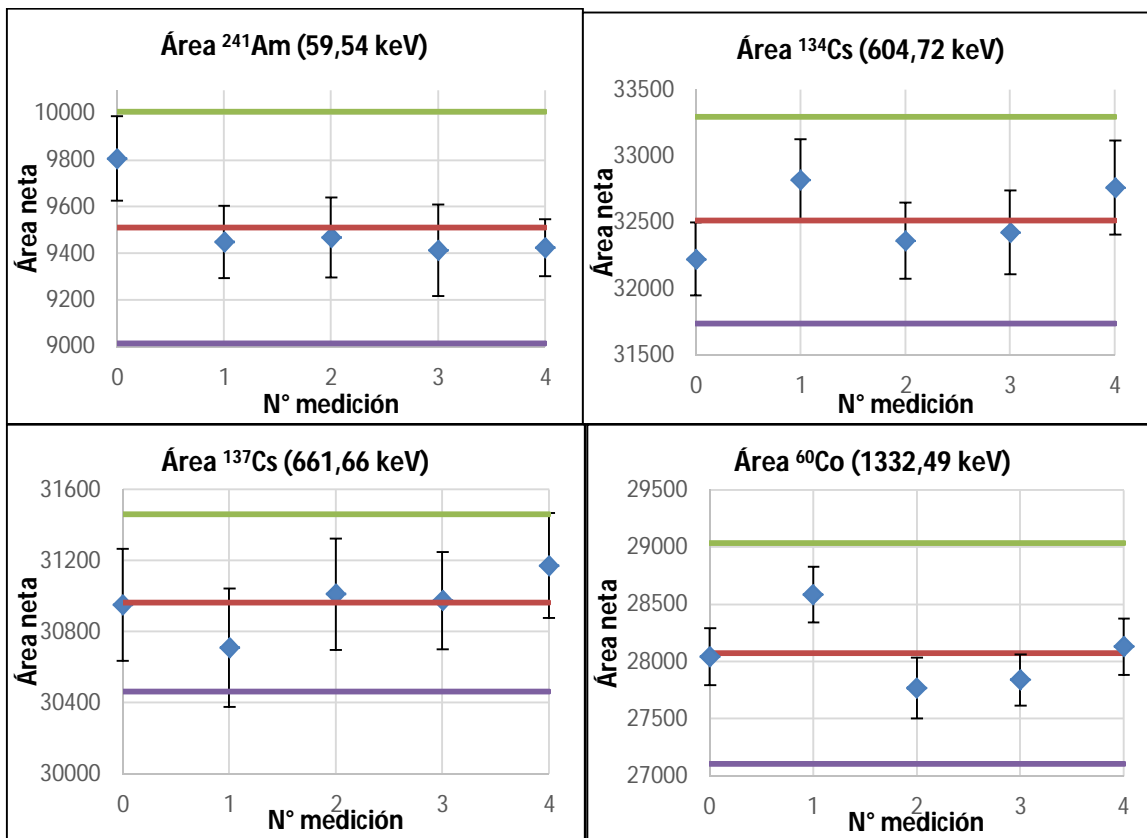


Figura 3.14. Áreas netas de cada medición para el patrón de tierra en capas, medido a 2 cm del detector. Arriba-izquierda: ²⁴¹Am a 59,54 keV; arriba-derecha: ¹³⁴Cs a 604,72 keV; abajo-izquierda: ¹³⁷Cs a 661,66 keV; abajo-derecha: ⁶⁰Co a 1332,49 keV. La línea roja corresponde a la media, la línea superior verde a la media + 3 sigma, y la azul inferior a la media - 3 sigma.

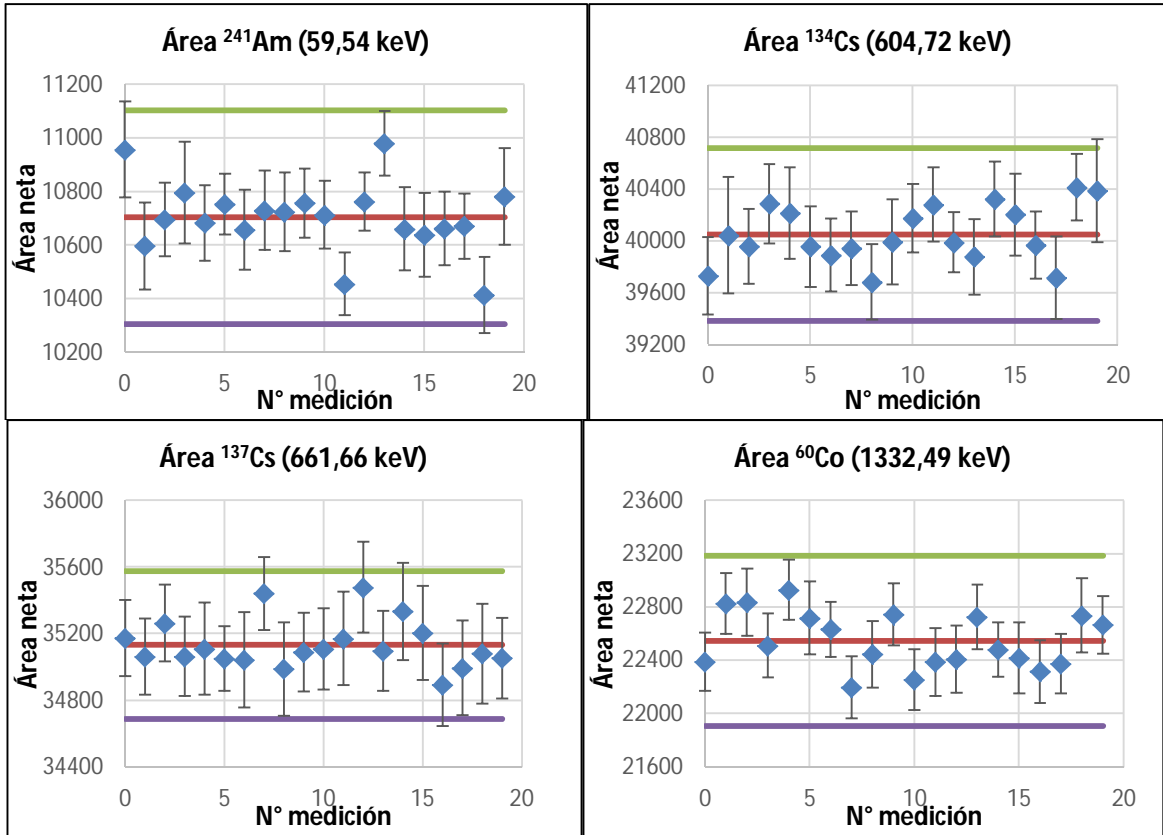
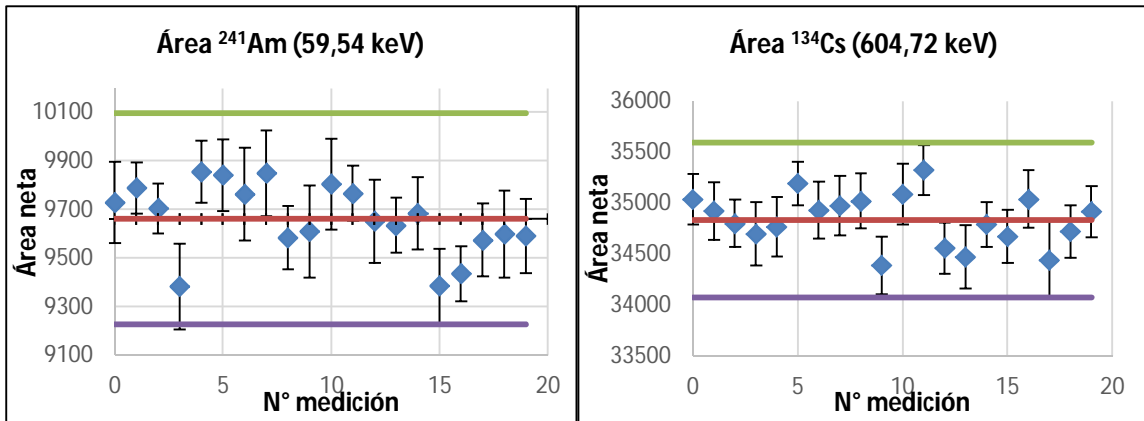


Figura 3.15. Áreas netas de cada medición para el patrón homogéneo de tierra, medido a 4 cm del detector. Arriba-izquierda: ^{241}Am a 59,54 keV; arriba-derecha: ^{134}Cs a 604,72 keV; abajo-izquierda: ^{137}Cs a 661,66 keV; abajo-derecha: ^{60}Co a 1332,49 keV. La línea roja corresponde a la media, la línea superior verde a la media + 3 sigma, y la azul inferior a la media - 3 sigma.



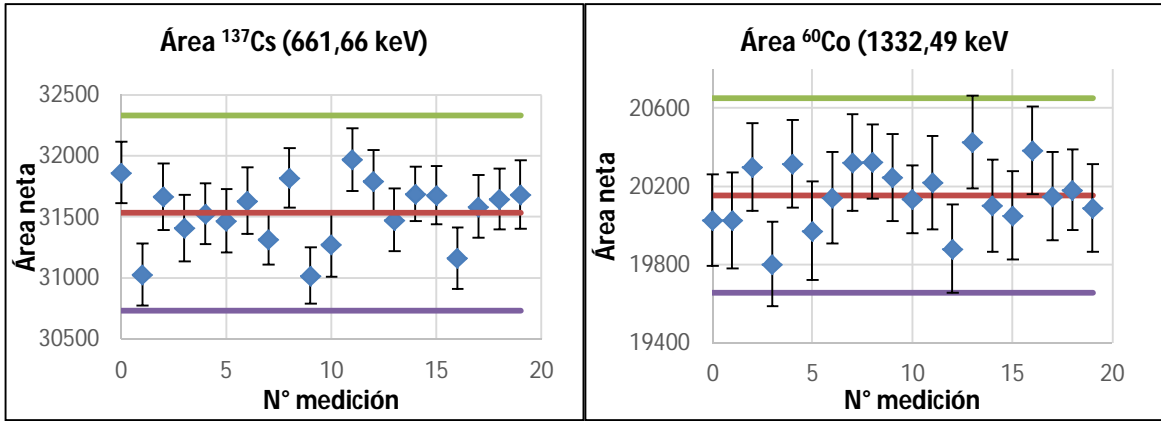


Figura 3.16. Áreas netas de cada medición para el patrón de tierra en capas, medido a 4 cm del detector. Arriba-izquierda: ^{241}Am a 59,54 keV; arriba-derecha: ^{134}Cs a 604,72 keV; abajo-izquierda: ^{137}Cs a 661,66 keV; abajo-derecha: ^{60}Co a 1332,49 keV. La línea roja corresponde a la media, la línea superior verde a la media + 3 sigma, y la azul inferior a la media - 3 sigma.

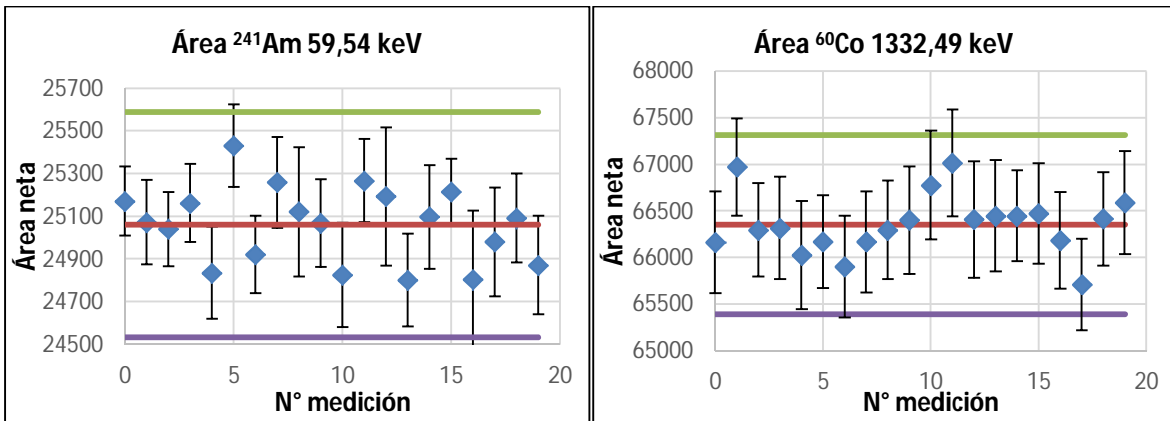


Figura 3.17. Áreas netas de cada medición para el patrón homogéneo de harina, medido a 4 cm del detector. Izquierda: ^{241}Am a 59,54 keV; derecha: ^{60}Co a 1332,49 keV. La línea roja corresponde a la media, la línea superior verde a la media + 3 sigma, y la azul inferior a la media - 3 sigma.

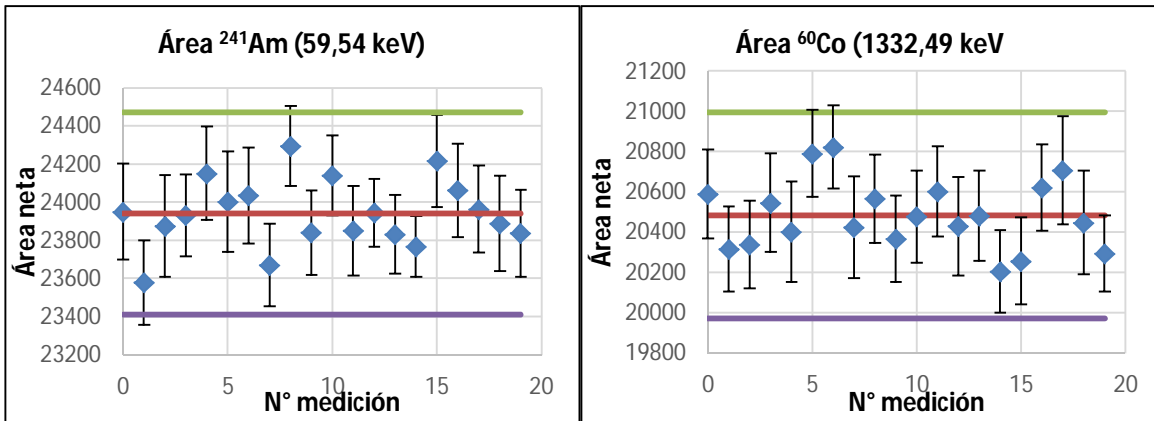


Figura 3.18. Áreas netas de cada medición para el patrón de harina en capas, medido a 4 cm del detector. Izquierda: ²⁴¹Am a 59,54 keV; derecha: ⁶⁰Co a 1332,49 keV. La línea roja corresponde a la media, la línea superior verde a la media + 3 sigma, y la azul inferior a la media - 3 sigma.

En estos gráficos no se observa ninguna tendencia positiva ni negativa en las áreas de los picos a través de las sucesivas mediciones, por lo tanto se puede afirmar que responden a distribuciones gaussianas. Por otro lado, se puede asegurar que en las mediciones de los patrones homogéneos no hubo acumulación de solución radiactiva en ningún punto y que los mismos mantuvieron su homogeneidad, al menos durante las mediciones. Los patrones en capas también permanecieron inalterables, sin movimiento de las gotas de solución radiactiva. Los puntos que superaron los umbrales de media + 3 sigma o media - 3 sigma fueron descartados para los futuros cálculos de eficiencias. Un punto importante a considerar en estos gráficos es que el detector funcionó de manera estable. El mismo es controlado diariamente para comprobar su estabilidad y buen funcionamiento.

Con estos valores se realizó un promedio para cada nucleído, tipo de patrón y altura de medición, con el fin de calcular las correspondientes eficiencias.

3.1.4. Eficiencias de detección

Teniendo los valores de las áreas netas para cada nucleído se calcularon las eficiencias experimentales correspondientes. Las Tablas 3.3 a 3.6 resumen estos valores para cada patrón en cada posición.

Para el caso de ¹³⁴Cs y ⁶⁰Co las eficiencias obtenidas fueron corregidas por el factor de corrección de suma por coincidencia obtenido con el programa EFFTRAN [6]. Los factores de corrección obtenidos mediante el método de S.I. Kafala [5] mostraron algunas inconsistencias para el ⁶⁰Co.

Nucleido	Energía (keV)	Eficiencias patrón homogéneo	Eficiencias patrón en capas
²⁴¹ Am	59,5409	0,008257 ± 0,000163	0,007799 ± 0,000155
¹³⁴ Cs	604,72	0,013976 ± 0,000560	0,013411 ± 0,000595
¹³⁷ Cs	661,657	0,012764 ± 0,000253	0,011981 ± 0,000249
⁶⁰ Co	1332,492	0,007843 ± 0,000170	0,007594 ± 0,000165

Tabla 3.3 Eficiencias de los patrones de tierra homogéneo y en capas, medidos en contacto con el detector.

Nucleido	Energía (keV)	Eficiencias patrón homogéneo	Eficiencias patrón en capas
²⁴¹ Am	59,5409	0,005393 ± 0,000106	0,004996 ± 0,000100
¹³⁴ Cs	604,72	0,007975 ± 0,000373	0,007587 ± 0,000350
¹³⁷ Cs	661,657	0,007237 ± 0,000146	0,006872 ± 0,000131
⁶⁰ Co	1332,492	0,004459 ± 0,000107	0,004335 ± 0,000103

Tabla 3.4. Eficiencias de los patrones de tierra homogéneo y en capas, medidos a 2 cm del detector.

Nucleido	Energía (keV)	Eficiencias patrón homogéneo	Eficiencias patrón en capas
²⁴¹ Am	59,5409	0,003447 ± 0,000067	0,003299 ± 0,000065
¹³⁴ Cs	604,72	0,005319 ± 0,000238	0,004956 ± 0,000231
¹³⁷ Cs	661,657	0,004611 ± 0,000092	0,004503 ± 0,000094
⁶⁰ Co	1332,492	0,002862 ± 0,000068	0,002836 ± 0,000066

Tabla 3.5. Eficiencias de los patrones de tierra homogéneo y en capas, medidos a 4 cm del detector.

Nucleido	Energía (keV)	Eficiencias patrón homogéneo	Eficiencias patrón en capas
²⁴¹ Am	59,5409	0,004886 ± 0,000071	0,004786 ± 0,000097
⁶⁰ Co	1332,492	0,002867 ± 0,000043	0,002792 ± 0,000045

Tabla 3.6. Eficiencias de los patrones de harina homogéneo y en capas, medidos a 4 cm del detector.

Las incertidumbres fueron calculadas como la combinación de las incertidumbres introducidas por cada uno de los factores considerados (áreas, tiempos de medición, intensidades de emisión y actividades) [12].

En el ANEXO I del presente trabajo se muestran las fórmulas utilizadas para los cálculos de las respectivas incertidumbres.

3.2. Resultados de las simulaciones

Las Tablas 3.7 y 3.8 muestran los resultados obtenidos para las eficiencias calculadas mediante las simulaciones con PENELOPE.

Nucleido	Energía (keV)	Eficiencias patrón homogéneo	Eficiencias patrón en capas
²⁴¹ Am	59,5409	0,00783 ± 0,00002	0,00795 ± 0,00012
¹³⁴ Cs	604,72	0,01487 ± 0,00022	0,01417 ± 0,00036
¹³⁷ Cs	661,657	0,01392 ± 0,00012	0,01352 ± 0,00037
⁶⁰ Co	1332,492	0,00856 ± 0,00002	0,00740 ± 0,00022

Tabla 3.7 Eficiencias de los patrones de tierra homogéneo y en capas, obtenidas mediante la simulación de los patrones en contacto con el detector.

Nucleido	Energía (keV)	Eficiencias patrón homogéneo	Eficiencias patrón en capas
²⁴¹ Am	59,5409	0,00347 ± 0,00003	0,00319 ± 0,00011
¹³⁴ Cs	604,72	0,00512 ± 0,00006	0,00496 ± 0,00014
¹³⁷ Cs	661,657	0,00477 ± 0,00002	0,00468 ± 0,00014
⁶⁰ Co	1332,492	0,00280 ± 0,00002	0,00272 ± 0,00008

Tabla 3.8. Eficiencias de los patrones de tierra homogéneo y en capas, obtenidas mediante la simulación de los patrones a 4 cm del detector.

3.3. Comparación de los resultados

3.3.1. Diferencias entre patrones de tierra homogéneos y en capas

Para analizar las diferencias entre las eficiencias de los patrones de tierra homogéneo y fabricado en capas se graficaron las curvas de eficiencia en función de la energía de emisión, colocando ambas en un mismo gráfico.

Las Figuras 3.19 y 3.20 representan los gráficos de las eficiencias determinadas experimentalmente y mediante simulaciones, en contacto y a 4 cm del detector, respectivamente.

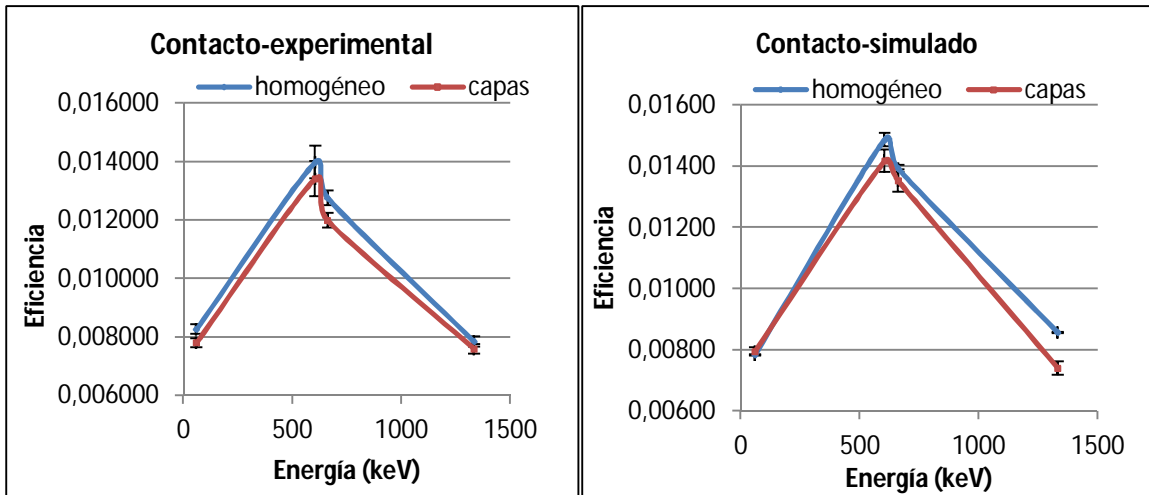


Figura 3.19. Gráficos de eficiencia en función de la energía para los patrones de tierra en contacto con el detector. Izquierda: experimental; derecha: simulado.

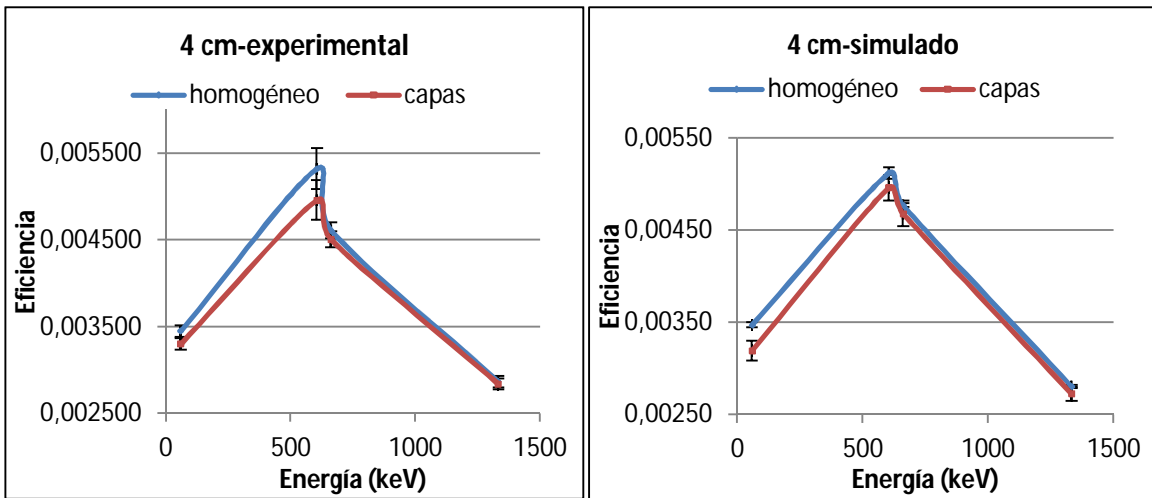


Figura 3.20. Gráficos de eficiencia en función de la energía para los patrones de tierra a 4 cm del detector. Izquierda: experimental; derecha: simulado.

La Figura 3.21 representa el gráfico de las eficiencias determinadas experimentalmente a 2 cm del detector. Para los patrones de tierra medidos a 2 cm del detector no se realizaron las correspondientes simulaciones.

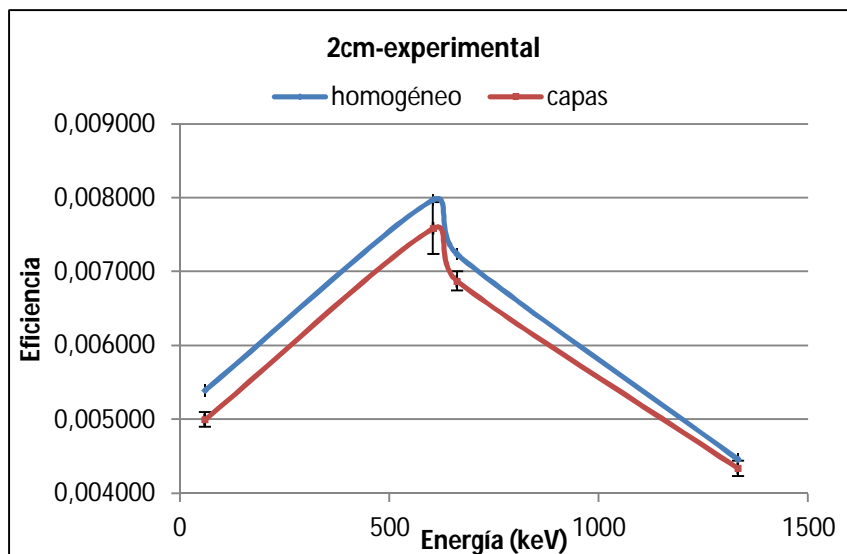


Figura 3.21. Gráficos de eficiencia en función de la energía para los patrones de tierra a 2 cm del detector.

En estos gráficos puede observarse que para la matriz tierra la eficiencia de los patrones homogéneos es superior a la de los patrones fabricados en capas discretas, especialmente para el ^{241}Am lejos del detector. Esto se observa en todas las simulaciones y en mediciones experimentales. Estos fotones de baja energía, como era de esperar, sufren mucho más la atenuación de la matriz que los de energías superiores. El grado de interacción de la radiación gamma con la materia depende de la energía de la radiación ya que el número de pares producidos es proporcional a la energía de los electrones de la interacción primaria, por ende, cuanto menor es esta energía, menor cantidad de números de pares producidos habrá en el detector. Se sabe que el coeficiente de atenuación presenta valores altos a bajas energías, lo que se explica conociendo los procesos de interacción involucrados, tales como el efecto fotoeléctrico, la dispersión Compton y la creación de pares.

Los patrones de tierra medidos en contacto con el detector también presentaron este comportamiento. Si bien se observa que el patrón homogéneo presenta una mayor eficiencia que el de capas, esto se da en menor medida que en las mediciones a altura y parecería estar más acentuada a mayores energías que a menores. En el gráfico de las eficiencias simuladas se observa la misma tendencia, aunque a 1332 keV la diferencia de eficiencias está más acentuada que en las experimentales. Para justificar esta diferencia puede suponerse que al medir los patrones en contacto con el detector ocurren otros efectos que en las simulaciones no estaría contemplado.

Por lo general los patrones multigamma son medidos a una cierta distancia del detector para evitar el efecto de suma por coincidencia y el aumento del tiempo muerto, por lo que se consideró más importante centrarse en las diferencias de eficiencias a mayores distancias y no en contacto. De todas formas, es necesario seguir este análisis a futuro para determinar la razón por la cual se da esta diferencia entre las simulaciones y los resultados experimentales.

3.3.2. Diferencias entre resultados experimentales y simulaciones

A continuación se muestran los gráficos donde se comparan los resultados de las eficiencias obtenidos experimentalmente y mediante simulaciones con PENELOPE (Figuras 3.22 y 3.23).

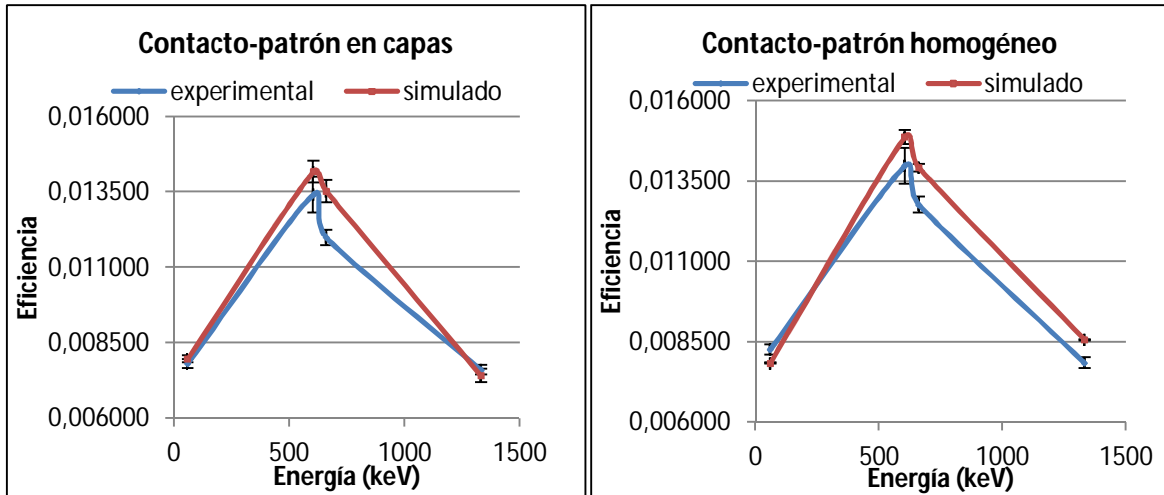


Figura 3.22. Gráficos correspondientes a la curva de eficiencia en función de la energía para los patrones de tierra medidos en contacto con el detector. Izquierda: patrón fabricado en capas; derecha: patrón homogéneo.

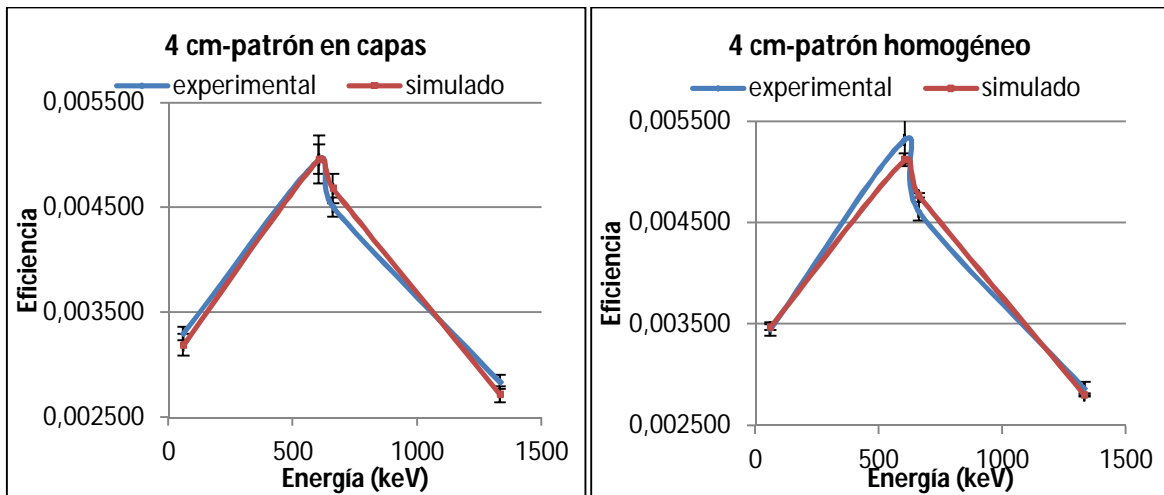


Figura 3.23. Gráficos correspondientes a la curva de eficiencia en función de la energía para los patrones de tierra medidos a 4 cm del detector. Izquierda: patrón fabricado en capas; derecha: patrón homogéneo.

De estos gráficos se puede inferir que al medir a cierta altura las simulaciones coinciden muy bien con las mediciones experimentales. Sin embargo, en contacto con el detector, como se dijo anteriormente, se observan mayores diferencias, especialmente a energías medias. Según M.C. Lépy *et ál* [11] diferencias de hasta un 10% son aceptables al medir fuentes volumétricas en diferentes matrices. En las mediciones en contacto se obtuvieron diferencias máximas en ese orden, por

lo que los resultados son aceptables, sin embargo, a 4 cm las diferencias fueron todas menores al 4%. Si bien todos los resultados fueron satisfactorios, habría que analizar las causas de las diferencias que se observan al medir sobre el detector, y determinar si las simulaciones realmente están reflejando la realidad de las interacciones que ocurren.

A priori se puede verificar el modelo de Monte Carlo para las mediciones en altura.

3.3.3. Diferencias entre distintas matrices

Por último, se compararon las eficiencias experimentales obtenidas entre la matriz tierra y harina para los nucleidos ^{241}Am y ^{60}Co , medidos a 4 cm del detector. En las Figura 3.24 y 3.25 se muestran los gráficos de barras que dan cuenta de estas diferencias.

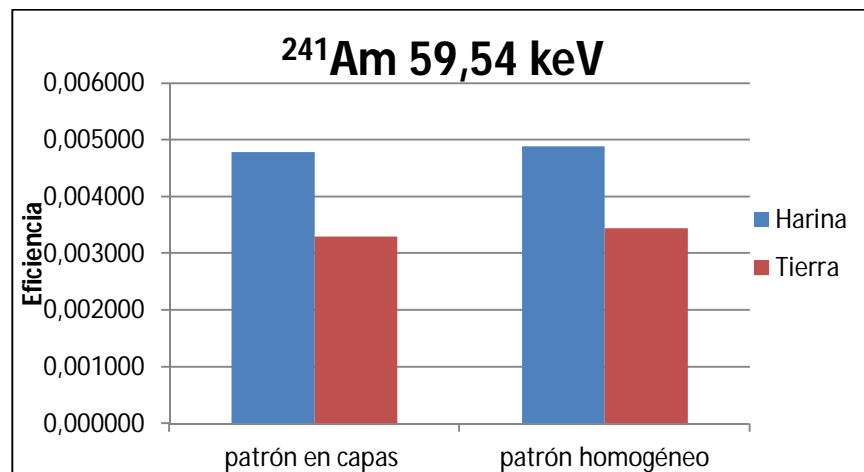


Figura 3.24. Comparación de las eficiencias de los patrones homogéneo y en capas para las matrices harina y tierra, para ^{241}Am , medidos a 4 cm del detector.

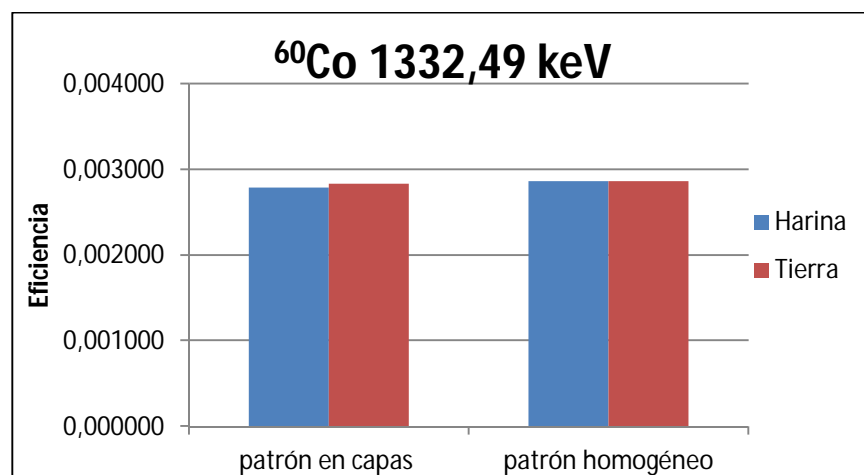


Figura 3.25. Comparación de las eficiencias de los patrones homogéneo y en capas para las matrices harina y tierra, para ^{60}Co , medidos a 4 cm del detector.

En primer lugar, se observa que las eficiencias de ^{241}Am dependen mucho de la matriz del patrón. Este radionucleido presenta eficiencias aproximadamente 40% mayores en la harina que en la tierra, mientras que para el ^{60}Co la diferencia es casi nula. La harina tiene una densidad aproximadamente 50% menor que la tierra, por ende el factor de atenuación de la harina es mucho menor que el de la tierra. Esto se evidencia para los nucleidos que emiten con energías bajas, como el ^{241}Am a 59,54 keV, pero no para el ^{60}Co , a 1332,49 keV. Las eficiencias de este nucleido casi no sufren la diferencia de densidad. Como se mencionó previamente en el inciso 1.1.1., los mecanismos de interacción más conocidos para los rayos gamma en la materia son el efecto fotoeléctrico, la dispersión Compton y la creación de pares: para todos estos mecanismos los correspondientes coeficientes de atenuación dependen de la densidad del material (aumentando con ésta), y, por lo general, son mayores cuanto menores son las energías de los fotones emitidos.

Por otro lado, comparando los patrones fabricados homogéneamente y en capas discretas, los patrones homogéneos siguen presentando mayores eficiencias tanto en harina como en tierra. Esto se hace más notorio para el ^{241}Am , como era de prever, debido a los efectos comentados anteriormente. Sin embargo, al disminuir la densidad del material esta diferencia disminuye.

CONCLUSIONES

Como primera instancia, se lograron fabricar dos patrones homogéneos, uno de tierra y otro de harina, utilizando una técnica aprendida durante una visita al CIEMAT de España. Esto permitirá al LMR, en un futuro próximo, fabricar patrones similares a las muestras homogéneas que se reciben para analizar.

Se lograron establecer relaciones de eficiencias para las mediciones realizadas a distintas alturas del detector, que luego serán utilizadas como factores de corrección para los distintos análisis por espectrometría gamma de muestras ambientales que se realizan en el laboratorio, principalmente tierras.

Se pudo comprobar de forma experimental y simulada que el factor de atenuación es mayor cuanto menor es la energía del fotón gamma emitido por un radionucleido, y cuanto mayor es la densidad del material que comprende la matriz de la fuente. Esto se comprobó al analizar ^{241}Am (59,54 keV) y ^{60}Co (1332,49 keV) en tierra y harina.

Se realizó la verificación del modelo de Monte Carlo para fuentes volumétricas de diferentes matrices medidas a 4 cm del detector. Esto resulta muy beneficioso ya que aportó confianza a la utilización del programa de simulación PENELOPE. De esta manera se podrán simular patrones multigamma para ser utilizados en espectrometría gamma ambiental, evitando la preparación de distintos patrones, y por ende, minimizando la irradiación del personal.

A futuro se espera determinar las discrepancias para las mediciones realizadas en contacto con el detector, a fin de establecer los efectos que las producen, y que conllevan a las diferencias obtenidas entre los resultados experimentales y las simulaciones.

Este trabajo está siendo presentado, en colaboración con el LMRI-CIEMAT, para ser expuesto luego en el *22nd International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications*, a desarrollar en la ciudad de Salamanca, España en Mayo de 2019.

REFERENCIAS

- [1] Gordon Gilmore, John Hemingway, *Gamma Ray Spectrometry*, 2^o edition, ed. John Wiley & Sons.
- [2] Glenn Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 3^o edition, ed. John Wiley & Sons.
- [3] <http://www.lnhb.fr/nuclear-data/nuclear-data-table/>
- [4] LNB - LNHB / CEA - Table de Radionucléides.
- [5] Kafala S.I., "Simple method for true coincidence summing correction", *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 191, 105-114, 1995.
- [6] Vidmar T., "EFFTRAN—A Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, section A, vol. 550, 603–608, 2005.
- [7] Rossi M.P., "Caracterización de detectores de Germanio mediante códigos Monte Carlo", *tesis de Especialización en Radioquímica y Aplicaciones Nucleares*, Instituto Dan Beninson, Comisión Nacional de Energía Atómica - Universidad Nacional de San Martín, 2014.
- [8] Baró J., Sempau J., Fernández-Varea J.M., Salvat F., "PENELOPE: An algorithm for Monte Carlo simulation of the penetration and energy loss of electrons and positrons in matter", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, section B, vol. 100, 31–46, 1995.
- [9] Shkhashiro, A., Gondin da Fonseca Azeredo, A.M., Sansone, U., Fajgelj, A., "Matrix materials for proficiency testing: optimization of a procedure for spiking soil with gamma-emitting nuclides", *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, vol. 387, 2509–2515, 2007.
- [10] Mejuto M., Crespo M.T., García-Toraño E., Peyrés V., Roteta M., Pérez del Villar L., "Preparation and characterisation of a ²²⁶Ra spiked slag as reference material for radioactive control of steelworks", *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 94, 166-174, 2014.
- [11] Lépy M.C., Altitzoglou T., Arnold D., Bronson F., Capote Noy R., Décombaz M., De Corte F., Edelmaier R., Herrera Peraza E., Klemola S., Korun M., Kralik M., Neder H., Plagnard J., Pommé S., de Sanoit J., Sima O., Ugletveit F., Van Velzen L., Vidmar T., "Intercomparison of efficiency transfer software for gamma-ray spectrometry", *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 55, 493–503, 2001.

[12] *Evaluation of measurement data — Guide to the expression of uncertainty in measurement*, Bureau International des Poids et Mesures, Francia, 2008.

Lecturas complementarias

- Salvador Gil, Eduardo Rodríguez, *Física Re-Creativa*, 1^o edición, ed. Prentice Hall.
- Peyrés V., “Caracterización de detectores de fotones el método de Monte Carlo y aplicación a la medida de emisores de positrones de interés en medicina nuclear”, *tesis doctoral*, Universidad Complutense de Madrid, 2010.

ANEXOS

Anexo 1: cálculo de incertidumbres

Sabiendo que la eficiencia absoluta en el pico de energía plena viene dada por la ecuación (13), entonces su incertidumbre será la combinación de las incertidumbres introducidas por cada uno de los factores (u_j), según:

$$U_{Eff} = \sqrt{\left(\frac{\partial Eff}{\partial \text{área}} \cdot u_{\text{área}}\right)^2 + \left(\frac{\partial Eff}{\partial t} \cdot u_t\right)^2 + \left(\frac{\partial Eff}{\partial i} \cdot u_i\right)^2 + \left(\frac{\partial Eff}{\partial Act} \cdot u_{Act}\right)^2} \quad (17)$$

Donde $\frac{\partial Eff}{\partial j}$ es la derivada parcial de la eficiencia respecto de j y los u_j son las respectivas incertidumbres absolutas de las magnitudes.

La incertidumbre del área $u(\text{área})$ está dada por la desviación estándar del promedio, $\sigma_{\langle x \rangle}$, que es una medida de la incertidumbre estadística asociada al promedio en el proceso de medir la magnitud N veces:

$$u_{\text{área}} = \sigma_{\langle x \rangle} = \frac{\sigma}{\sqrt{N}} \quad (18)$$

donde el promedio \bar{x} es:

$$\bar{x} = \frac{\sum_{i=1}^N x_i}{N} \quad (19)$$

y la desviación estándar (σ) es:

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2}{(N - 1)}} \quad (20)$$

La incertidumbre del tiempo se tomó como la resolución del programa de medición: 0,01 s.

La incertidumbre de la intensidad de emisión se obtuvo de la base de datos nucleares perteneciente al Laboratorio Nacional Henri Becquerel, Francia [3]:

Nucleido	Intensidad de emisión	Incertidumbre
⁶⁰ Co	0,99826	0,000006
¹³⁴ Cs	0,9763	0,0008
¹³⁷ Cs	0,8499	0,0020
²⁴¹ Am	0,3592	0,0017

Tabla 4.1. Intensidades de emisión de cada nucleido, y sus incertidumbres asociadas, obtenidos de la base de datos nucleares perteneciente al Laboratorio Nacional Henri Becquerel, Francia.

La incertidumbre de la actividad de cada nucleido en cada patrón corresponde a la aplicación de la incertidumbre porcentual de la concentración de actividad de la solución calibrada, utilizada en cada caso.

Operando queda:

$$U_{Eff} = \frac{\text{área}}{t \cdot i \cdot Act} \sqrt{\left(\frac{u(\text{área})}{\text{área}}\right)^2 + \left(\frac{u(t)}{t}\right)^2 + \left(\frac{u(i)}{i}\right)^2 + \left(\frac{u(Act)}{Act}\right)^2} \quad (21)$$

que fue la ecuación utilizada en el cálculo de las incertidumbres.

AGRADECIMIENTOS

En primer lugar quiero agradecer a Gabriela Cerutti y Mario Rossi por la dirección de este trabajo.

A Gabriela por los consejos y el control de las calibraciones y los cálculos.

A Mario por las infinitas simulaciones.

A Florencia González, por la caracterización de la tierra.

A todo el equipo del Laboratorio Metrología de Radioisótopos por brindarme todo su apoyo, facilitándome los recursos necesarios.

A Pablo Arenillas, Claudia Guardo, Christian Balparado, Eliana Depaoli, y la gente del CEMA, por el aporte y discusión de ideas.

A la gente del LMRI de España: Virginia, Eduardo, Nuria, Marcos, Victor, Teresa y Mikel, por las mediciones realizadas allí para dar comienzo a este trabajo, y por su hospitalidad y buena onda.

A todos aquellos que en mayor o menor medida colaboraron con su realización.

A mis amigas, que siempre están en los mejores y peores momentos: Ceci, Dani y Fio.

A mis padres, que hicieron todo lo posible siempre.

A Maxi, por bancarme y compartir la vida conmigo.