Tesis doctoral en Física

Desarrollo de un método basado en simulación Monte Carlo para el cálculo y análisis de espectros gamma complejos, sin el uso de fuentes de referencia

Autor: Lic. Enrique R. González

Presentado ante la Facultad de Matemática, Astronomía, Física y Computación como parte de los requisitos para acceder al grado de

Doctor en Física

de la

# Universidad Nacional de Córdoba

año 2019

Director: Prof. Dr. Edgardo V. Bonzi



Esta obra está bajo una Licencia Creative Commons Atribución-NoComercial-CompartirIgual 4.0 Internacional

https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/4.0/

A mis padres, Victorino y María Hortensia

Π

Un agradecimiento especial al Dr. Raúl T. Mainardi

IV

Mi gratitud y recuerdo al Dr. Jesús Soto Torres

VI

### Resumen

Debido a la baja actividad específica de las muestras, los métodos rutinarios de análisis espectro-métrico de radiaciones gamma de muestras ambientales, son realizados en volúmenes grandes y cercanos al detector. Esta elección, favorece la eficiencia pero origina importantes efectos de autoatenuación como también, efectos geométricos y en el caso de radioisótopos emisores de rayos gamma en cascada de importantes problemas de coincidencia.

La presencia de los mencionados efectos, puede ser evitado si el espectro de la muestra es analizado sobre las bases de un espectro de referencia correspondiente a una fuente estándar con exactamente la misma geometría, composición, y densidad que las muestras bajo estudio y conteniendo cantidades conocidas de cada radioisótopo presente en la muestra. En numerosas ocasiones, las condiciones anteriores no son satisfechas y consecuentemente, deben usarse métodos computacionales para evaluar las eficiencias de pico y las correcciones debidas a diferencias entre la muestra bajo estudio y la fuente estándar.

El advenimiento de los modernos ordenadores capaces de realizar cientos de miles o millones de operaciones por segundo, ha traído como consecuencia y ha hecho posible, el cálculo y la simulación de procesos complejos que de otro modo sería imposible de realizar con un cálculo exacto. En este contexto, se han desarrollado numerosos códigos para la simulación del transporte combinado de fotones, electrones y positrones en la materia tales como, GEANT4, PENELOPE, MCNP5, etc. Estos códigos, toman en cuenta en mayor o menor medida, los principales procesos de absorción y dispersión de fotones desde que la partícula es emitida desde el núcleo, como así también, los de las partículas secundarias producidas en tales procesos.

En esta tesis, se desarrolla un método basado en simulaciónes Monte Carlo que permite el cálculo y el análisis de espectros gamma complejos a partir de los espectros medidos. El método, es adecuado para detectar la presencia de líneas entremezcladas u ocultas, y determinar el área de picos de líneas situadas sobre el fondo real de otras de mayor energía. Se comienza estudiando el espectro de una fuente monocromática volumétrica de <sup>40</sup>K en

#### VIII

donde se analizan efectos de producción de pares en la muestra. Se estudia el espectro binario de una fuente de  $^{60}Co$  donde pueden observarse efectos de simultaneidad, los cuales son analizados y cuantificados. Se estudió y calculó el espectro gamma complejo poli-energético de muestras de suelo, donde se presentan los resultados obtenidos con las muestras de mayor actividad para demostrar la eficacia del método. Se muestran los resultados de una intercomparación con muestras calibradas y por último, se hace un estudio de la auto-absorción y la influencia de la densidad en la matriz usada como fuente, se obtienen mediante simulación curvas para las eficiencias en función de la densidad y energía.

**Palabras clave:** Espectrometría de rayos gamma, Detectores de GeHP, Simulaciónes Monte Carlo, Eficiencia total y de pico, Efectos de coincidencia, Efectos de auto-absorción en la muestra

#### PACS:

29.30.Kv Espectrometría de rayos gamma 29.40.Wk Detectores de estado sólido 87.10.Rt Simulaciónes Monte Carlo 29.40.-n Detectores de radiación 29.40.Mc Detectores centelladores 23.20.Lv Transiciones  $\gamma$  y niveles de energía 07.05.Tp Simulaciones y modelado computacional

## Abstract

Due to the low specific activity of the samples, the routine methods of gamma-spectrometric analysis of gamma radiation of environmental samples are performed in large volumes close to the detector. This choice improves the efficiency but originates important effects of self-attenuation as well as geometric effects and in the case of radioisotopes emitting gamma rays in cascading important coincidence problems.

The presence of the before mentioned effects, can be avoided if the spectrum of the sample is analyzed on the basis of a reference spectrum corresponding to a standard source with exactly the same geometry, composition, and density as the samples under study, and containing known activities of each radioisotope present in the sample. Sometimes, the above conditions are not satisfied and consequently, computational methods must be used to evaluate peak efficiencies and corrections due to differences between the sample under study and the standard source.

The advent of modern computers capable of performing hundreds of thousands or millions of operations per second, has brought as a consequence and has made possible, the calculation and simulation of complex processes with much bigger statistics, increasing the cases under study that would otherwise be impossible to perform with an exact calculation. In this context, numerous codes have been developed for the simulation of the combined transport of photons, electrons and positrons in the matter such as, GEANT4, PENELOPE, MCNP5, etc. These codes, take into account to a greater or lesser extent, the main processes of absorption and dispersion of photons since the particle is emitted from the nucleus, as well as those of the particles secondary produced in such processes.

In this thesis, a method based on Monte Carlo simulations that allows the calculation and analysis of complex gamma spectra from the measured spectra is developed. The method is suitable for detecting the presence of intermixing lines or hidden lines, and determining the area of peaks of lines located on the real bottom of other higher energy lines. We begin by studying the spectrum of a source volumetric monochromatic of  $^{40}K$  where effects of pair production on the sample are analyzed. I study the binary spectrum of a  ${}^{60}Co$  source where simultaneity effects were observed, analyzed and quantified. The polychromatic complex gamma spectra of soil samples was studied and calculated in order to show the effectiveness of the method, the results obtained with the samples of major activity are presented. The results of an inter-comparison with calibrated samples are shown and finally, a study of the self-absorption and the influence of the density in the matrix used as a source is made, curves are obtained by simulation for the efficiencies in function on the density and energy.

**Keywords:** Gamma-ray spectrometric, HPGe detectors, Monte Carlo simulation, Peak and total efficiency, Coincidence summing effects

#### PACS:

29.30. Kv Gamma ray spectrometry, 29.40. Wk Solid state detectors, 87.10. Rt Monte Carlo simulations, 29.40.<br/>-n Radiation detectors, 29.40. Mc Scintillator detectors, 23.20. Lv<br/>  $\gamma$  - transitions and energy levels, 07.05. Tp Computational modeling and simulations

# Introducción

El propósito de esta tesis es investigar y desarrollar un método basado en simulación Monte Carlo para determinar la actividad de fuentes o muestras radiactivas de baja actividad; de formas y tamaños diversos sin el uso de muestras de referencia o patrón.

Se busca que el método, permita el análisis de espectros gamma complejos como los espectros de muestras de suelo por ejemplo. Asimismo, se procura que el método permita detectar la presencia de líneas ocultas o entremezcladas y determinar sus actividades.

Las muestras calibradas, son costosas y difíciles de conseguir y fabricar en muchas ocasiones, siendo el método de simulación una alternativa muy valiosa en estos casos. Muchas veces también, se presentan situaciones en las cuales dos o más picos aparecen fusionados en el espectro formando un solo pico, esto puede ocurrir aún en detectores de alta resolución. En detectores de baja resolución, tales como los centelladores de NaI(Tl) este último aspecto es particularmente importante.

También, puede ocurrir que el fotopico de una línea aparezca superpuesto con el pico de escape de alguna línea de energía superior; o bien que coincida con el borde compton de otra línea que se desea determinar. En estos casos, no son aplicables algunos métodos tradicionales tales como el cálculo de línea de base. Estas, entre otras, son algunas cuestiones que se plantean y se intentan resolver en esta tesis mediante el uso de la simulación.

Los modernos ordenadores actuales y el desarrollo de numerosos códigos que simulan el transporte de radiación, han hecho posible el cálculo de espectros y el cálculo de las eficiencias de pico, las eficiencias totales, las eficiencias de escape y producción de pares, etc. La baja actividad de las muestras ambientales, requiere el uso de muestras de gran tamaño ubicadas muy cerca del detector esto, acrecienta los efectos de auto-atenuación y coincidencia aspectos que deben ser tenidos en cuenta y analizados. Estos efectos, pueden ser estudiados y calculados mediante el uso de códigos de simulación de transporte de radiación.

Por tanto, podemos decir que el uso de la simulación Monte Carlo en la espectrometría de radiaciones y en la espectrometría gamma, tiene cada vez más uso y aplicaciones diversas tanto científicas como tecnológicas. La espectrometría gamma además, tiene la particularidad de que permite identificar los radionucleidos emisores aparte de posibilitar medir la actividad.

# Índice general

| Re | esum                      | en V  | <b>VII</b>    |
|----|---------------------------|---|---------------|
| Ał | ostra                     | $\operatorname{ct}$   | IX            |
| In | trodu                     | ucción  | XI            |
| 1. | <b>Esp</b><br>del<br>1.1. | ectrometría gamma. Justificación, importancia y estado<br>arte<br>Importancia y estado del arte | <b>1</b><br>1 |
| 2. | Esp                       | ectrometría de radiaciones gamma  | 11            |
|    | 2.1.<br>2.2.              | Forma y proporciones de un espectro gamma   | 11            |
|    |                           | ción de espectros de radiación $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$               | 14            |
|    |                           | 2.2.1. Convolución de un espectro   | 14            |
|    |                           | 2.2.2. Método de deconvolución  | 17            |
|    |                           | 2.2.2.1. Deconvolución de un espectro discreto  | 17            |
|    | <b>9</b> 3                | Principio de funcionamiente de los detectores de CeHP   | 18            |
|    | 2.3.<br>2.4               | Método para determinar las concentraciones iniciales en ca-                                     | 19            |
|    | 2.1.                      | denas radiactivas   | 20            |
| 3. | Mar                       | co teórico. Interacción de fotones, electrones y positro-                                       |               |
|    | $\mathbf{nes}$            | con la materia  | <b>23</b>     |
|    | 3.1.                      | Introducción  | 23            |
|    | 3.2.                      | Absorción de fotones  | 24            |
|    |                           | 3.2.1. Absorción de fotones a bajas energías  | 24            |
|    |                           | 3.2.2. Efecto fotoeléctrico atómico   | 26            |
|    |                           | 3.2.3. Efecto Fotonuclear   | 28            |
|    |                           | 3.2.4. Producción de pares y aniquilación de positrones   | 29            |
|    | 3.3.                      | Dispersión de fotones   | 32<br>32      |

|    |   | 3.3.2.   | Dispersi  | ón incoherente o Compton   | 33 |  |  |  |  |
|----|---|--|---|--|----|--|--|--|--|
|    | 3.4.  | Fuente   | e de ${}^{60}Co$ .                              | . Desarrollos teóricos para obtener el espectro  |    |  |  |  |  |
|    |   | de sim   | ultaneida                                       | d o coincidencia por simulación  | 35 |  |  |  |  |
|    |   | 3.4.1.   | Espectro  | o de simultaneidad o coincidencia  | 35 |  |  |  |  |
|    |   |  | 3.4.1.1.  | Correlación angular entre fotones emitidos   |    |  |  |  |  |
|    |   |  |   | por un núcleo radiactivo   | 36 |  |  |  |  |
|    |   |  | 3.4.1.2.  | Espectro de simultaneidad obtenido a partir de los espectros simulados                           | 39 |  |  |  |  |
| 4. | Simulación Monte Carlo de sistemas de espectrometría gam- |  |   |  |    |  |  |  |  |
|    | ma  |  |   |  | 43 |  |  |  |  |
|    | 4.1.  | Efecto   | s de auto-absorción en muestras volumétricas 45 |  |    |  |  |  |  |
|    | 4.2.  | Correc 4.2.1.  | Correcciones por efectos de simultaneidad       |  |    |  |  |  |  |
|    |   |  | Matriz d  | le absorción y no-absorción  | 48 |  |  |  |  |
|    |   | 4.2.2.   | Decaimi<br>kow .                                | ento beta complejo. Método matricial de Sem-   | 51 |  |  |  |  |
|    |   | 4.2.3.   | Captura<br>gamma                                | electrónica con conversión interna y emisión<br>en decaimientos complejos                        | 53 |  |  |  |  |
|    |   | 4.2.4.   | Método<br>teo en u                              | matricial para obtener las ecuaciones de con-<br>n decaimiento de captura electrónica arbitrario | 55 |  |  |  |  |
|    | 4.3.  | Deterr   | ninación  | teórica de eficiencias de sistemas de espectro-  |    |  |  |  |  |
|    |   | metría   | a gamma   | · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·  | 57 |  |  |  |  |
|    | 4.4.  | Simulación Monte Carlo de espectros gamma de muestras de suelo y ambientales |   |  |    |  |  |  |  |
| 5. | Trat  | tamien   | ito de da                                       | tos. Fundamentación del método de cálcu-   | 65 |  |  |  |  |
|    | 5 1   | Fypro  | sionos an                                       | alíticas obtanidas a partir de espectros sam   | 00 |  |  |  |  |
|    | J.1.  | ma simulados de cadenas en equilibrio radiactivo y fuentes                   |   |  |    |  |  |  |  |
|    | 5.9   | mono(<br>Mátod   | romatica  | to de espectres samme compleios de cadanas   | 00 |  |  |  |  |
|    | <i>J.Z</i> .  | radiactivas en equilibrio y fuentes monocromáticas                           |   |  |    |  |  |  |  |
|    | 5.3.  | Convo  | lución co                                       | n una gaussiana  | 77 |  |  |  |  |
| 6. | De  | sarroll  | o experi  | mental   | 79 |  |  |  |  |
|    | 6.1.  | Descri   | pción del                                       | instrumental   | 79 |  |  |  |  |
|    | 6.2.  | Prepa  | Preparación de las muestras                     |  |    |  |  |  |  |
|    | 6.3.  | Deterr   | ninación  | de los parámetros de convolución   | 85 |  |  |  |  |
|    |   |  |   |  |    |  |  |  |  |

XV

| 7.               | Res   | Resultados  |     |  |  |  |  |
|------------------|---|---|-----|--|--|--|--|
|                  | 7.1.  | Resultados obtenidos para una muestra volumétrica mono-   |     |  |  |  |  |
|                  |   | cromática de ${}^{40}K$   |     |  |  |  |  |
|                  |   | 7.1.1. Análisis de los picos simple y doble escape  | 92  |  |  |  |  |
|                  |   | 7.1.2. Análisis del ensanchamiento del pico de aniquilación   |     |  |  |  |  |
|                  |   | de positrones   | 94  |  |  |  |  |
|                  |   | 7.1.3. Cálculo de la actividad con los diferentes picos del es-   |     |  |  |  |  |
|                  |   | pectro  | 95  |  |  |  |  |
|                  | 7.2.  | Ajuste de una fuente de ${}^{60}Co$ . Ajuste del espectro de coinci-  |     |  |  |  |  |
|                  | - 0   | dencia obtenido por simulación  | 99  |  |  |  |  |
|                  | 7.3.  | 3. Resultados obtenidos para una muestra compleja de suelo con un contenido predominante de elementos de la serie del $^{238}U$ |     |  |  |  |  |
|                  | <b>₩</b> 4  |   |     |  |  |  |  |
|                  | 7.4.  | Resultados obtenidos para una muestra con un contenido pre-   | 110 |  |  |  |  |
|                  | 75  | dominante de elementos pertenecientes a la serie del $2^{-1}n$ .  | 110 |  |  |  |  |
|                  | (.).  | Intercomparación con el Laboratorio de Radiobiología de la  | 117 |  |  |  |  |
|                  | 76  | Estudio de la influencia de la densidad de la muestra en la   | 11( |  |  |  |  |
|                  | 1.0.  | estudio de la minuencia de la densidad de la muestra en la  | 195 |  |  |  |  |
|                  |   | 7.6.1 Eficiencia de pico y eficiencia total en función de la  | 120 |  |  |  |  |
|                  |   | densidad y la energía   | 125 |  |  |  |  |
|                  |   | 7.6.2 Belación entre el área del fotopico la eficiencia de pico   | 120 |  |  |  |  |
|                  |   | v la masa de material radiactivo  | 130 |  |  |  |  |
|                  |   |   | 100 |  |  |  |  |
| 8.               | 3. Comentarios, conclusiones y perspectivas futuras |   |     |  |  |  |  |
|                  | 8.1.  | Comentarios   | 135 |  |  |  |  |
|                  | 8.2.  | Conclusiones  | 138 |  |  |  |  |
|                  | 8.3.  | Perspectivas Futuras  | 139 |  |  |  |  |
| Q                |   |   |     |  |  |  |  |
| э.               | 0 1   | Desintegración de Series Badiactivas, Equilibrio Badiactivo y   | 149 |  |  |  |  |
|                  | 5.1.  | Ecuaciones de Bateman   | 143 |  |  |  |  |
|                  |   |   | 140 |  |  |  |  |
| Bibliografía     |   |   |     |  |  |  |  |
| Lista de figuras |   |   |     |  |  |  |  |
| Lista de tablas  |   |   |     |  |  |  |  |

XVI

## Capítulo 1

# Espectrometría gamma. Justificación, importancia y estado del arte

En este capítulo hacemos un análisis de la importancia de la espectrometría gamma en distintas aplicaciones de la física básica y experimental. Enumeramos y ejemplificamos algunas de sus aplicaciones en la investigación de vanguardia en física actualmente en los principales centros de investigación en todo el mundo.

#### 1.1. Importancia y estado del arte

La espectrometría gamma es uno de los métodos o técnicas científicas más importantes para la investigación de punta en varias ramas de la física hoy en día[1]. Su campo de aplicación es vasto y excede el estudio de las propiedades nucleares o el campo de la física nuclear, para extenderse a otras ramas de investigación actual. Como ejemplos importantes de la aplicación de la espectrometría gamma podemos citar la astrofísica[2], la física de partículas[3], la astro-física nuclear[4][5], la física de altas energías [6], aplicaciones diversas en el campo de la física como la determinación de contenido radiactivo en muestras diversas y ambientales[7], etc. La espectrometría gamma es aplicada y utilizada en los principales laboratorios de física de todo el mundo[8] hoy en día.

Existen en la actualidad, numerosos proyectos que incluyen el diseño de complejos sistemas de espectrómetros gamma algunos de los cuales, comienzan este año[9][8][6]. El laboratorio LUNA (Laboratory for Underground Nuclear Astrophysics) es un ejemplo de ello. Los detectores GRETINA(Gamma-Ray Energy Tracking In-beam Nuclear Array) y GRETA(Gamma Ray Energy Tracking Array) son también dos importantes ejemplos de espectrómetros gamma de última generación.

En física nuclear, un gran número de técnicas experimentales han sido desarrolladas para el estudio de la estructura nuclear. La espectroscopia de rayos gamma de alta resolución, es una de estas poderosas herramientas gracias a la disponibilidad de los detectores de GeHP. Durante la última década, ha sido notable el incremento de los desarrollos de detectores que involucran el uso de múltiples cristales de GeHP[10]. Uno de estos diseños, lo constituye el detector GAMMASPHERE[10] en Estados Unidos, y el detector EUROBALL[11] en Europa. Estos detectores, se caracterizan porque rodean totalmente la muestra o cámara de medición. La Figura 1.1 muestra una imágen del detector Gammasphere



**Figura** 1.1: Detector GAMMASPHERE en el Lawrence Berkeley National Laboratory[11]

El detector GRETA, es un nuevo sistema de detección de rayos gamma de alta resolución[12]. El mismo, fue diseñado para revelar nuevos detalles sobre la estructura y el funcionamiento interno de los núcleos atómicos, y para mejorar nuestra comprensión de la materia y la creación de elementos estelares. Cuando este sistema se combine con el arreglo de detectores GRETINA, se creará una nueva matriz de detectores que rodee totalmente la muestra.

El detector GRETINA[9] se completó en el año 2011 y ha mostrado ser una poderosa herramienta para la investigación en física nuclear. El Laboratorio Nacional Lawrence Berkeley del Departamento de Energía de los Estados Unidos (Berkeley Lab) ha tenido un papel preponderante en la creación de ambos detectores, primero en GRETINA y ahora en GRETA.

El detector GRETA[8][12], permitirá medir cómo cambia la estructura nuclear cuando la cantidad de protones o neutrones es mucho mayor que la de los isótopos estables. El núcleo, es un ejemplo de un sistema cuántico de muchos cuerpos, es un sistema donde se producen interacciones complejas de partículas que involucran un fenómeno cuántico conocido como entrelazamiento.



Figura 1.2: Figura del Detector GRETA[12]

El detector GRETA, también podría ayudar a establecer las propiedades de los núcleos que resultan cómo consecuencia de las explosivas muertes de las estrellas, que pueden sembrar en el universo una variedad de elementos pesados[12]. Se busca conocer cómo se producen los elementos más pesados que el níquel o el hierro en el llamado proceso rápido de captura de neutrones o proceso-r después de que las estrellas como nuestro Sol colapsaron en su ciclo de vida.

El último hito del proyecto, pone en marcha la fase de diseño del proyecto y prevé la compra de algunos módulos detectores. Estos módulos cuentan con cristales de germanio de alta pureza (GeHP)[13], cada uno del tamaño de una taza de café, que son parte integral del diseño GRETA.

En el potente acelerador lineal FRIB(Facility for Rare Isotopes Beam),

los potentes haces de partículas cargadas (iones) se acelerarán a la mitad de la velocidad de la luz[12]. Estos haces golpearán blancos nucleares dentro de una cámara rodeada por la matriz GRETA, produciendo una gran variedad de elementos e isótopos. Muchos de estos elementos y sus isótopos, no se encuentran en la naturaleza y existen solo para fracciones de segundo antes de desintegrarse en núcleos más estables.

El conjunto de detectores GRETA está diseñado para rodear completamente las muestras, formando una capa esférica para medir de manera más completa y precisa la energía y la posición 3D de los rayos gamma que se propagan en los detectores. El conjunto contará con 120 cristales de germanio dispuestos en 30 módulos e incorporará 12 módulos detectores GRETINA[9].

Cada cristal de detector se confeccionará en dos diseños separados con forma hexagonal y cónica y que miden aproximadamente 3,5 pulgadas de largo.



Figura 1.3: Figura del Detector de rayos gamma EUROBALL[14]

En astrofísica, son numerosos los proyectos que se inician a partir de este año que emplean la producción de isótopos para simular procesos que ocurren en las estrellas[15] y utilizan espectrometría gamma[16][6]. Los ingredientes esenciales de la astrofísica nuclear son las reacciones termonucleares que dan forma a la vida y muerte de las estrellas y que son responsables de la síntesis de los elementos químicos en el universo.

En el subsuelo del Laboratorio Gran Sasso, se simulan procesos ocurridos en estrellas y los resultados son obtenidos y analizados mediante espectrometría gamma. El programa LUNA[16][5], es un proyecto que se centra en el estudio de la las etapas de la combustión nuclear después del hidrógeno. Esto se logrará gracias a un nuevo acelerador de 3,5 MeV de potencia capaz de entregar haces de protones, helio, y carbono que comenzará a operar bajo el Laboratorio Gran Sasso a partir de 2019[16]. La primera fase científica del acelerador estará centrada en la producción de  ${}^{12}C + {}^{12}C$  y las dos reacciones que generan neutrones libres dentro de las estrellas  ${}^{13}C(\alpha, n)^{16}C$  y  ${}^{22}N(\alpha, n)^{25}Mg$ .



**Figura** 1.4: Espectro gamma de la reacción  ${}^{2}H(\alpha, \gamma)^{6}Li$  tomada con un detector de Ge en el Laboratorio LUNA. El espectro de fondo del laboratorio se muestra con negro y fue restado del espectro medido. Las más importantes líneas  $\gamma$  debidas a reacciónes (n, n') y  $(n, \gamma)$  en los distintos materiales son mostrados con flechas.[16]

El fondo de ambiente o background es uno de los problemas que siempre está presente en mayor o menor medida en un sistema de detección gamma[17]. Una fuente de background son los efectos directos e indirectos de los radioisótopos de vida larga presentes en el laboratorio[17]. Lo más notable de este problema, está en las líneas de gamma emitidas por las cadenas radiactivas del <sup>238</sup>U, <sup>232</sup>Th y el <sup>40</sup>K. Estos isótopos, están presentes en el laboratorio y no dependen de los materiales que rodean el entorno inmediato del detector. Además de las fuentes de radiación provenientes de los materiales que componen el suelo, las paredes y el techo del laboratorio, existen otras numerosas fuentes de radiación gamma de ambiente[16]. Existen por ejemplo, efectos inducidos por rayos cósmicos, el Laboratorio Gran Sasso está ubicado a 1400 m de profundidad en el interior de la roca dolomítica de los Alpes a los fines de suprimir la componente nucleónica de los rayos cósmicos. Otro efecto beneficioso es la atenuación del flujo muónico de los rayos cósmicos.



**Figura** 1.5: Espectro de fondo del Laboratorio LNGS(Lab. Nac. Gran Sasso) medido con un detector de Ge a nivel del suelo, y bajo del suelo con blindaje total (Cu + Pb + anti - Rn) y parcial (Cu + Pb)[16]

Los muones son partículas elementales altamente penetrantes creadas en la parte superior de la atmósfera que dejan una estela o trayectoria de partículas y rayos gamma en el detector. Estos pueden en adición, generar neutrones de espalación no deseados[17] y crear núcleos radiactivos en el detector mismo o en los materiales del blindaje.

El estudio de las propiedades del núcleo atómico por medio de la espectroscopia de rayos gamma ha evolucionado a través del desarrollo de complejos detectores de rayos gamma compuestos por una matriz o arreglo de detectores de GeHP[11]. Estas matrices, que tienen una excelente relación pico/fondo trajo una verdadera revolución en la espectroscopia de rayos gamma a mediados de 1980. A partir de entonces, se observaron muchos fenómenos nuevos siendo uno de los más importantes los núcleos superdeformados[11].

El detector Euroball[11] fue la siguiente fase en el desarrollo. de grandes matrices de detectores de rayos gamma en Europa. Es una colaboración entre Francia, Reino Unido, Alemania, Italia, Dinamarca y Suecia. Los modernos conjuntos de detectores de rayos gamma consisten en muchos detectores cada uno rodeado por un detector de centelleo para detectar y restar la radiación dispersada del cristal de germanio(Supresores Compton). Estos espectrómetros de supresión de escape compton (ESS) mejoran la relación (Eficiencia de pico/Eficiencia total) del 25 % al 65 % para el espectro de  ${}^{60}Co$  con un detector de GeHP[11].

Esta mejora en la relación eficiencia de pico a eficiencia total (PT) es de crucial importancia en la espectroscopia de coincidencia dado que la probabilidad del fotopico es igual a  $(PT)^2$ . El efecto de la supresión compton por tanto, mejora la relación (P/T) en un factor superior a 8. Se obtienen mejoras aún mayores para coincidencias múltiples de orden 3 o 4 o 5. El detector Euroball está formado por más de 239 piezas de Ge individuales y tiene una eficiencia de pico de alrededor de un 10 %.



**Figura** 1.6: Figura que muestra la sonda Odyssey de la NASA junto con el sistema de detección gamma. El espectro gamma se debe a la captura de neutrones térmicos por el hidrógeno debajo de la superficie de marte. [14]

Hasta hace unos años había en todo el mundo una docena de arreglos con este nivel de sensibilidad[11] por ejemplo, TESSA3 (Reino Unido), Chateau de Cristal (Francia), Osiris (Alemania), Nordball (Dinamarca), Hera (EE. UU.), el Espectrómetro  $8\pi$  (Canadá). Luego siguió la construcción de la generación actual de arreglos o matrices de detectores de Ge, a saber, Eurogam, GASP y Gammasphere que mejoran el límite de detección en otras dos órdenes de magnitud.

Como un ejemplo importante de la aplicación de la espectrometría gamma fuera del dominio de la física nuclear, podemos mencionar el descubrimiento realizado en el año 2001 por la sonda marciana de la NASA Odyssey de grandes cantidades de hidrógeno en la superficie de marte que probablemente se debe a la existencia de agua helada debajo de la superficie del planeta cerca de los polos. La Figura 1.6[14] muestra la sonda junto con el sistema de detección gamma. Esta evidencia fue obtenida a través de la detección de neutrones y de radiación gamma producidos por la interacción de los rayos cósmicos sobre la superficie de marte. El detector gamma, usa la tecnología de encapsulamiento desarrollada para el detector EUROBALL.

La espectrometría gamma, está presente además en muchas otras disciplinas o áreas de la física tales como, la radiactividad ambiental, estudios de radiactividad en suelos, aguas etc. En geofísica es importante el estudio de elementos radiactivos producidos en la atmósfera por espalación o impactos de partículas de los rayos cósmicos en la atmósfera[18][19]etc.

Existen importantes laboratorios a nivel mundial que se dedican a la investigación en estas áreas. Son ejemplo de esto por citar solo algunos.

Instituto Tecnológico de Karlsruhe - Alemania http://gentleproject.eu/network/kit-ine/

Laboratorio de Radiactividad PTB- Alemania

https://www.ptb.de/cms/en/ptb/fachabteilungen/abt6/fb-61/613-alpha-and-gamma-spectrometry.html

National Physics Laboratory - Gran Bretaña

https://www.npl.co.uk/products-services/radioactivity

https://www.npl.co.uk/ionising-radiation

Laboratorio Henry Becquerel - Francia

http://www.lnhb.fr/

Laboratorio Nacional Lawrence Livermore - U.S.A.

https://www.llnl.gov/news/lab-scientists-use-radioactive-tracers-

determine-ages-streamflow

https://pls.llnl.gov/

Laboratorio de Radioprotección - Laboratorio Nacional Los Alamos -U.S.A.

https://www.lanl.gov/orgs/rp/index.shtml

Laboratorio de Investigación de Detectores y no Proliferación- Laboratorio Nacional Broohaven - U.S.A.

https://www.bnl.gov/NNS/detector.php

Nuclear science Division - Lawrence National Laboratory Berkeley

https://commons.lbl.gov/display/nsd/Nuclear %20Science %20Division %20Staff

https://sites.google.com/a/lbl.gov/low-background-facility/

Laboratorio ORION Universidad de Michigan - U.S.A.

https://cztlab.engin.umich.edu/

Instituto de Radioprotección ENEA - Italia

http://www.irp.enea.it/it

Laboratorio de Medida de la Radiactividad Ambiental - CIEMAT - España http://www.ciemat.es

Laboratorio de Radioactividad y Ambiente - Universidad Politécnica de Cataluña - Barcelona - España

 $https://inte.upc.edu/es/investigacion/programas/\ radioactividad-y-medio-ambiente$ 

Oficina federal de radioprotección de Alemania

http://www.bfs.de/EN/home

Laboratorio de Radiactividad - Universidad Politécnica de Valencia - España

http://medasegi.webs.upv.es/lra/capacidades/laboratorios/

Grupo de investigación y desarrollo en detección de radiación - Laboratorio Nacional Oak Ridge - U.S.A.

https://www.ornl.gov/division/nsitd/group/nuclear-material-detection

En algunos casos, la investigación llevada a cabo en los laboratorios de radiactividad ambiental que utilizan espectroscopia gamma, plantean complejos problemas matemáticos de difícil resolución. Algunos de estos laboratorios, se encuentran formando parte de grupos interdisciplinarios como por ejemplo, el Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universidad de Liverpool[19]el cual, se encuentra dentro del departamento de matemáticas de dicha Universidad: https://www.liverpool.ac.uk/mathematical-sciences/ research/environmental-radioactivity-research-centre/. El estado de arte en lo que se refiere al campo de la espectrometría gamma aplicada al campo de mediciones de radiactividad de muestras diversas se hace en el Capítulo 4. En los ejemplos anteriores se destaca la importancia de la espectrometría gamma, por tanto podemos decir que el estudio y la simulación de los espectros gamma en todos estos casos es de vital importancia. Los estudios y desarrollos llevados a cabo en una determinada área de investigación de los mencionados sistemas, puede tener aplicación en alguno de los otros. Por tanto, podemos afirmar que los resultados de este trabajo de tesis, pueden ser de importancia no solo en la determinación de radiactividad de muestras ambientales sino también en cualquiera de las otras ramas citadas anteriormente.

Podemos concluir por tanto, que la simulación del transporte de fotones gamma y el estudio de espectros gamma, es una herramienta vital para la investigación actual en física.

## Capítulo 2

# Espectrometría de radiaciones gamma

En este capítulo se hace un análisis de la forma y proporciones de un espectro gamma en base a las predicciones de la teoría y se analizan la presencia de picos de escape y aniquilación. Se define la función respuesta de un detector y se obtienen expresiones para el espectro medido en términos del espectro simulado. Posteriormente, se analiza el método de deconvolución. Por último, se describe un método para determinar las concentraciones iniciales en una cadena de n elementos radiactivos a partir de la actividad medida en intervalos fuera del equilibrio y usando la solución general de las ecuaciones de Bateman.

# 2.1. Forma y proporciones de un espectro gamma

Un espectro gamma es básicamente la distribución de probabilidad de que un fotón emitido desde la fuente interactúe con el detector y le entregue una cierta cantidad de energía al mismo. En esta interacción dos efectos pueden ocurrir, por un lado, puede ocurrir que el fotón entregue toda su energía al detector con lo cual el pulso de energía o de corriente registrado, será máximo. Por otro lado, puede suceder que el fotón entregue una cantidad parcial de su energía inicial al detector, como consecuencia de efectos de dispersión y absorción ocurridos en el propio detector o en los cuerpos circundantes[20][21]. En el primer caso, el fotón puede entregar toda su energía en un solo evento o bien, puede hacerlo en dos o más eventos consecutivos como por ejemplo, un proceso de dispersión dentro del detector seguido de otro de absorción total. El efecto producido en el espectro será un pico con forma de gaussiana llamada pico energía total o fotopico. La probabilidad del evento se define como la eficiencia de pico del sistema de detección y se lo designa con la letra  $\epsilon^P$ . En el segundo caso, es decir cuando el fotón entrega una cantidad parcial de su energía, puede ocurrir que el fotón primario tras haber tenido un evento de dispersión, salga del detector entregando de este modo una fracción de su energía.

También, puede ocurrir que tenga uno o más eventos de dispersión fuera del detector y un evento de absorción total en el detector etc. En ambos casos, la energía entregada será menor que la energía inicial  $E_0$  del fotón y por tanto, el evento será registrado con una energía entre cero y  $E_0$ . El efecto de estas interacciones en el espectro es producir una curva continua llamado *continuo compton*.

La forma y las proporciones del espectro por tanto, dependerá del tipo y tamaño del detector y de la energía de los fotones incidentes dado que estos parámetros, influyen en la probabilidad de los distintos procesos[20]. Así para un detector suficientemente grande, puede ocurrir que de acuerdo a como sea el dispositivo experimental, que todos los fotones que llegan entreguen toda su energía al volumen sensible.

Este podría ser el caso por ejemplo, de un detector que rodee totalmente la fuente. En esta situación, el espectro va a consistir en un solo pico el fotopico, siendo nula la porción que corresponde al efecto compton y a los picos de escape, retrodispersión, etc.

Por el contrario, para un detector de tamaño intermedio, existen una serie de posibilidades de que el fotón entregue una cantidad parcial de energía. Puede ocurrir, que una fracción de energía escape fuera del detector por ejemplo, o puede ocurrir que el fotón tenga un evento de dispersión y luego escape del detector.

También puede suceder, que el fotón tenga un doble evento de dispersión y luego escape y así sucesivamente, esto dará lugar a una superposición de los perfiles compton llamados simple, doble, triple compton etc. Dichos perfiles, se extienden hasta cerca del fotopico.

Además de los dos procesos mencionados, la absorción total o parcial de la energía del fotón incidente, existen otros procesos que pueden producir picos a lo largo del espectro. Si la energía del fotón es mayor que 1,22 MeV la probabilidad de producción de pares comienza a ser posible e importante. Si uno de los fotones de aniquilación escapa del detector y el otro se absorbe completamente, se formará un pico a la energía de  $E_0 - 2mc^2$  llamado pico de simple escape.

Por el contrario, si los dos fotones de aniquilación escapan del detector, se formará un pico a una energía  $E_0 - 2mc^2$  keV llamado pico de doble escape. Similarmente a los picos mencionados, deben agregarse otros debidos a procesos similares, por ejemplo un pico debido a fotones retro-dispersados con ángulos cercanos a 180° en el blindaje o cuerpos circundantes y que luego, son completamente absorbidos en el detector. También, deben ser tenidos en cuenta otros picos tales como los correspondientes a los fotones  $K_{\alpha}$  y  $K_{\beta}$ emitidos por el material del detector que luego de un efecto fotoeléctrico son auto-absorbidos[20] en el mismo y que aparecen en la zona de bajas energías. Si algunos de estos fotones escapan del detector, esto puede dar lugar a la formación de dos picos adicionales muy pequeños próximos al fotopico de energía  $E_0[20]$  que por lo general, aparecen fusionados con éste. La Figura 2.1 ilustra los tres principales casos tratados. Si el detector es pequeño, los eventos de múltiple dispersión compton son muy poco probables y por consiguiente, no aparecerán en el espectro. Por la misma razón, el pico de simple escape no estará presente, dado que es poco probable que escape solo uno de los fotones y que el otro sea absorbido. Por el contrario, como la probabilidad de que ambos fotones escapen es grande



**Figura** 2.1: Distintas formas de un espectro gamma según el tamaño del detector[20]

el pico de doble escape tendrá mayor probabilidad de aparecer en el espectro. El espectro de un detector pequeño por lo tanto, consiste simplemente de un fotopico más un continuo simple compton y un pico doble escape. Por lo general, los detectores no son ni muy pequeños ni demasiado grandes por lo tanto, pueden ser considerados como de tamaño intermedio y por consiguiente, es de esperar que estén presentes la mayor parte de los procesos mencionados anteriormente.

### 2.2. Función respuesta de un detector. Convolución y deconvolución de espectros de radiación

#### 2.2.1. Convolución de un espectro

El espectro altura de pulso o espectro medido de una fuente de radiación puede escribirse como una convolución entre dos funciones[20]

$$M(E) = \int_0^\infty R(E - E')S(E') \, dE'$$
 (2.1)

donde R(E - E') es llamada la función respuesta o función resolución de energía del sistema de detección, representa la probabilidad de que una partícula emitida desde la fuente con energía inicial E' sea grabada con una energía entre E y E + dE. Por otro lado, S(E')dE' es el espectro fuente o número de partículas emitidas por la fuente con energía entre E' y E' + dE'mientras que M(E)dE es el espectro medido o número de partículas registradas por el detector con energía entre E y E + dE. Dado que R(E - E')representa una probabilidad debe cumplir

$$\int_{0}^{\infty} R(E - E') \, dE = 1 \tag{2.2}$$

Volviendo a la ecuación (2.1) a los fines prácticos, es a veces más conveniente expresar la función respuesta R(E - E') de manera desdoblada es decir, tomando separadamente la parte que es inherente al detector propiamente dicho, con su electrónica asociada, y la parte que compete a la fuente y a los cuerpos que rodean al detector tales como soportes, blindajes, etc. Podemos reescribir la función respuesta como

$$R(E - E') = R'(E - E')\epsilon^{T}(E')$$
(2.3)

donde  $\epsilon^{T}(E')$ es la eficiencia total, y representa la probabilidad de que una partícula que salió emitida desde la fuente con energía E' interactúe con el detector[22]. Por su parte, R'(E - E') es la probabilidad de que dado que la partícula interactuó con el detector entregue una cantidad de energía comprendida entre  $E \ y \ E + dE$  al mismo. La primera, depende de la fuente y de la disposición de los cuerpos que rodean el detector, mientras que R'(E - E') depende del detector únicamente, sus características, su electrónica asociada, etc. Podemos por tanto, reescribir la ecuación (2.1) como

Función respuesta de un detector

$$M(E) = \int_0^\infty R'(E - E')\epsilon^T(E')S(E') \, dE'$$
(2.4)

Como dijimos,  $\epsilon^T(E')$  es la eficiencia total y representa la probabilidad de que una partícula inicialmente emitida por la fuente con energía E' luego de pasar por diversos procesos en la propia fuente o en los cuerpos circundantes, interactúe con el detector y deposite en él una cierta cantidad de energía. La función R'(E - E') en este caso, será la probabilidad de que dado que la partícula interactuó con el detector, ésta sea grabada con una energía entre E y E + dE es decir R'(E - E') en este caso, toma en cuenta los procesos de dispersión de energía alrededor de un valor dado, llevados a cabo en el detector y en su electrónica asociada tales como tubos fotomultiplicadores (PM) etc. Un caso particularmente importante, es el de una fuente monocromática que emite partículas con una energía bien definida  $E_0$ . Si todas las partículas que llegan al detector entregan toda su energía como en el caso de un detector grande, en la ecuación (2.4) debemos tomar

$$S(E') = N_0 \delta(E' - E_0)$$
(2.5)

donde  $N_0$  es el número de partículas con energía  $E_0$  emitidas por la fuente en el intervalo de tiempo considerado. Por lo general, en la práctica las partículas que interactúan con el detector solamente entregan una cierta fracción de su energía al detector y aún cuando llegasen a él con una energía bien definida  $E_0$ , la energía entregada será distinta para cada partícula. Esto es equivalente a tener una fuente continua emitiendo una cantidad  $N_0$ de fotones para cada energía en el intervalo entre 0 y  $E_0$  y para la cual, todos los fotones entregan toda su energía al detector. En este caso, debemos tomar simplemente

$$S(E') = N_0 \tag{2.6}$$

Por lo tanto, para una fuente monocromática la ecuación (2.4) puede escribirse

$$M(E) = N_0 \int_0^\infty R'(E - E') \epsilon^T(E') \, dE'$$
(2.7)

Si el espectro es discreto como es el caso de un espectro grabado con un multicanal la ecuación (2.4) puede escribirse como una sumatoria

$$M_{i} = \sum_{j=1}^{N} R'(E_{i} - E_{j})S_{j}\epsilon_{j}^{T}$$
(2.8)

donde  $M_i$  es el número de cuentas correspondiente al canal  $i \ge E_i$  es la energía correspondiente a dicho canal de acuerdo a la calibración. N es el número de canales tomado para grabar el espectro. La expresión (2.2) se convierte en

$$\sum_{j=1}^{N} R'(E_i - E_j) = 1 \qquad donde \quad j = 1, 2, \dots, N$$
(2.9)

Dado que existe una correspondencia unívoca entre la energía y el número de canal podemos escribir las ecuaciones (2.8) y (2.9) en términos del número de canal i, j directamente

$$M_{i} = \sum_{j=1}^{N} R'(i-j)S_{j}\epsilon_{j}^{T}$$
(2.10)

$$\sum_{j=1}^{N} R'(i-j) = 1 \quad j = 1, 2, \dots, N$$
(2.11)

Para el caso de una fuente monocromática, debemos tomar  $S_j = N_0$  y la ecuación (2.10) puede escribirse

$$M_{i} = N_{0} \sum_{j=1}^{N} R'(i-j)\epsilon_{j}^{T}$$
(2.12)

Este método, donde se obtiene M(E) o  $M_i$  conociendo S(E'),  $\epsilon(E')$  y R'(E - E') es llamado método de convolución. Si se conoce  $M_i$  (espectro medido), podemos aún aplicar la ecuación (2.12) para conocer  $N_0$  por ejemplo, conociendo R'(i - j) y  $\epsilon_i^T$ . El valor de la eficiencia total  $\epsilon_i^T$  puede ser obtenida por simulación Monte Carlo (sumando en el archivo de salida el intervalo correspondiente).  $N_0$  en este caso, viene a ser el parámetro de ajuste del espectro simulado al espectro medido. Para obtenerlo, podemos tomar una suma sobre todos los canales correspondientes al fotopico del espectro medido por ejemplo, a los efectos de minimizar el error. La función de respuesta R'(i - j) puede ser tomada como una gaussiana normalizada.

$$R(E_i - E_j) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma(E_j)}} e^{-\frac{(E_i - E_j)^2}{2\sigma(E_j)^2}}$$
(2.13)

La desviación estándar  $\sigma = \sigma(E)$  puede ser obtenida experimentalmente, para algunos detectores tiene la forma de una función del tipo

$$\sigma(E) = aE^b \tag{2.14}$$

donde a y b son constantes [23].

#### 2.2.2. Método de deconvolución

La deconvolución es el proceso inverso al de convolución, consiste básicamente en obtener los valores de  $S_i$  y  $\epsilon_i$  conociendo  $M_i$  y R'(i-j).

#### 2.2.2.1. Deconvolución de un espectro discreto

Podemos escribir la ecuación (2.8) como

$$M_{i} = \sum_{j=1}^{N} R_{ij} S_{j} \epsilon_{j} \quad j = 1, 2, \dots, N$$
(2.15)

y donde

$$R_{ij} = R(i-j) \tag{2.16}$$

ésta ecuación puede ser escrita a su vez en forma matricial como

$$M = RQ \tag{2.17}$$

dónde Q es una matriz  $N \times 1$  con elementos definidos por

$$q_j = S_j \epsilon_j \tag{2.18}$$

multiplicando ambos miembros de la ecuación (2.17) por  $R^{-1}$  obtenemos una solución para Q[21]

$$Q = R^{-1}M \tag{2.19}$$

de esta ecuación, podemos obtener las componentes  $q_j$  de donde podemos despejar a su vez  $S_j$  o  $\epsilon_j$  conociendo una de ambas. Normalmente, lo que se busca conocer es la actividad  $S_j$  dado que podemos obtener la eficiencia  $\epsilon_j$ mediante simulación Monte Carlo. Este método, implica la inversión de una matriz de 4000 × 4000 u 8000 × 8000 componentes según sea el número de canales usado. Esto, puede ser muy complicado y la solución puede conducir a errores considerables[21]. Por este motivo, en esta tesis usaremos el método de convolución y obtendremos la actividad mediante un ajuste del espectro simulado al espectro medido. La actividad de un elemento radiactivo se define como el número de desintegraciones de los núcleos de dicho elemento por unidad de tiempo. La actividad es igual a

$$a(t) = \lambda N(t) \tag{2.20}$$

donde  $\lambda$  es la constante de desintegración del elemento y N(t) es el número de núcleos radiactivos del elemento al tiempo t. En lo sucesivo, nos referiremos a N como al número de canales mientras que nos referiremos a la función N(t) como el número de núcleos al tiempo t. La actividad media de un elemento radiactivo en un tiempo T puede escribirse como

$$\overline{a} = \frac{AreaFotopico}{\epsilon^P} \frac{1}{I} \frac{100}{T}$$
(2.21)

donde AreaFotopico es el área o número de cuentas del fotopico de la línea en cuestión, I es la intensidad de la línea y  $\epsilon^P$  es la eficiencia de pico. Esta expresión, nos permite relacionar magnitudes medidas con un detector (AreaFotopico) con magnitudes calculadas ( $\epsilon^P$ ). Esta expresión, será utilizada en el Capítulo 7 para calcular la actividad de una sustancia.

#### 2.2.2.2. Deconvolución de espectros contínuos

Si tenemos un espectro continuo como el de la ecuación (2.4) podemos convertirlo en espectro discreto, simplemente dividiendo el espectro en Nsegmentos de largo  $\Delta E_j = E_{j+1} - E_j$  suficientemente pequeños[21] con lo cual, la ecuación (2.4) puede escribirse

$$M(E) = \sum_{j=1}^{N} \int_{E_j}^{E_{j+1}} R(E - E') \epsilon(E') S(E') \, dE' \quad j = 1, 2, \dots, N \quad (2.22)$$

El número neto de cuentas en el canal i será

$$M_i = \int_{E_j}^{E_{j+1}} M(E) \, dE' \tag{2.23}$$

reemplazando M(E) por el valor dado en la ecuación (2.4)

$$M_{i} = \int_{E_{i}}^{E_{i+1}} \sum_{j=1}^{N} \int_{E_{j}}^{E_{j+1}} R(E - E') \epsilon(E') S(E') \, dE' dE \qquad (2.24)$$

o bien

$$M_{i} = \sum_{j=1}^{N} \int_{E_{i}}^{E_{i+1}} dE \int_{E_{j}}^{E_{j+1}} R(E - E') \epsilon(E') S(E') dE'$$
(2.25)
Si consideramos que S(E') es aproximadamente constante en el intervalo [Ej, Ej + 1] e igual a

$$S(E') = \frac{S_j}{\Delta E_j} \tag{2.26}$$

donde Sj es el valor medio que toma la función S(E') en el intervalo [Ej, Ej+1] y  $\Delta E_j$  es la longitud de dicho intervalo. Podemos sacar este factor fuera del signo integral y escribir

$$M_{i} = \sum_{j=1}^{N} S_{j} \epsilon_{j} \frac{1}{\Delta E_{j}} \int_{E_{i}}^{E_{i+1}} dE \int_{E_{j}}^{E_{j+1}} R(E - E') dE'$$
(2.27)

donde  $\epsilon_j$  es la eficiencia absoluta de la línea de energía  $E_j$ . Definiendo la matriz de resolución como

$$R_{ij} = \frac{1}{\Delta E_j} \int_{E_i}^{E_{i+1}} dE \int_{E_j}^{E_{j+1}} R(E - E') dE'$$
(2.28)

podemos escribir la ecuación (2.23) como la ecuación (2.15)

$$M_{i} = \sum_{j=1}^{N} R_{ij} S_{j} \epsilon_{j} \quad i, j = 1, 2, \dots, N$$
(2.29)

de donde podemos obtener las soluciones (2.18) y (2.19)

## 2.3. Principio de funcionamiento de los detectores de GeHP

Los detectores de GeHP basan su funcionamiento en el principio de ionización y creación de pares hueco electrón en el material del detector. Las partículas liberadas en los principales procesos ocurridos dentro del detector como dispersión compton, el efecto fotoeléctrico y la producción de pares, producen partículas cargadas de alta energía que luego interactúan con el detector mediante colisiones que generan iones. La carga liberada, es colectada por medio de la aplicación de un potencial aplicado a caras opuestas del detector. El potencial aplicado, produce un campo eléctrico que mueve las cargas que luego son colectadas en los electrodos produciendo un pulso de señal. Este pulso, es amplificado a la salida del detector por un preamplificador que amplifica la señal de modo tal que pueda ser transmitida a través de un cable de algunos metros de largo hasta el lugar donde se encuentra el resto del instrumental. La señal transmitida a lo largo del cable, es tomada por un amplificador y convertida en un pulso de voltaje de entre 0 y 10 Volts. Este pulso de voltaje es luego clasificado de acuerdo a su energía por un multicanal y ubicado en un canal proporcional a su energía. Esta energía, es proporcional a la cantidad de carga o pares hueco electrón producidos en el material del detector la cual, a su vez es proporcional a la energía del fotón incidente.

## 2.4. Método para determinar las concentraciones iniciales en cadenas radiactivas

En esta sección, se deduce un método para obtener las concentraciones iniciales en términos de las actividades medias medidas en intervalos fuera del equilibrio[24]. La solución general de un sistema de ecuaciones que describen el decaimiento de una cadena de n elementos radiactivos con condiciones iniciales distintas de cero se trata en el Apéndice. El decaimiento de una cadena de n elementos radiactivos satisface el siguiente conjunto de ecuaciones diferenciales acopladas[25]:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1$$
$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2$$

(2.30)

$$\frac{dN_n}{dt} = \lambda_{n-1}N_{n-1} - \lambda_n N_n$$

donde  $N_k = N_k(t)$  es el número promedio de núcleos del elemento k al tiempo t y  $\lambda_k$  es la constante de desintegración respectiva. La solución más

general de este sistema de ecuaciones, (ver Cap. 9) está dada por:

$$N_n(t) = \sum_{m=1}^{n-1} N_{m0} \left( \prod_{q=m}^{n-1} \lambda_q \right) \sum_{j=m}^n \frac{e^{-\lambda_j t}}{\left[ \prod_{\substack{k=m\\k\neq j}}^n (\lambda_k - \lambda_j) \right]} + N_{n0} e^{-\lambda_n t} \qquad (2.31)$$

La actividad del k-ésimo elemento se define como  $\lambda_k N_k$  y representa la cantidad de núcleos en la muestra que se desintegraron en la unidad de tiempo y por consiguiente, no deben tenerse en cuenta los núcleos que se formaron en el mismo intervalo de tiempo. Por este motivo, la actividad no debe tomarse como la derivada total de  $N_k$  respecto del tiempo. Una situación particularmente importante, es aquella para el cual el tiempo de vida media del primer elemento es mayor que el de sus descendientes en este caso, después de un tiempo suficientemente grande las actividades de cada uno de los integrantes de la serie se igualan a la de su progenitor[24]. Tal condición, se denomina equilibrio radiactivo y sirve para calcular la actividad de un elemento que no tiene líneas de emisión medibles a partir de la actividad de algunos de los descendientes integrantes de la cadena en equilibrio radiactivo con él. La actividad media del n-ésimo elemento de la serie en un intervalo arbitrario de tiempo comprendido entre  $t_{0n}$  y  $t_{0n}+T_{0n}$  puede escribirse como:

$$\overline{a}_n = \frac{\overline{N}_n}{T_{0n}} = \frac{1}{T_{0n}} \int_{t_{0n}}^{t_{0n}+T_{0n}} \lambda_n N_n(t) dt = \frac{1}{T_{0n}} \sum_{m=1}^n C_m N_{m0}$$
(2.32)

donde hemos reemplazado el valor de  $N_n(t)$  en el integrando por la expresión (2.29) y donde

$$C_{nm} = \begin{cases} \left(\prod_{q=m}^{n} \lambda_{q}\right) \sum_{j=m}^{n} \frac{e^{-\lambda_{j}t_{0}}\left(1-e^{-\lambda_{j}T_{0}}\right)}{\prod\limits_{\substack{k=m\\k\neq j}} (\lambda_{k}-\lambda_{j})} \frac{1}{\lambda_{j}} \quad para \quad m < n \\ e^{-\lambda_{n}t_{0}} \left(1-e_{t0}^{-\lambda}T_{0}\right) \quad para \quad m = n \\ 0 \qquad para \quad m > n \end{cases}$$

Estas ecuaciones, constituyen un sistema de ecuaciones lineales cuyas n incógnitas son los números  $N_{0n}$  y pueden ser escritas en forma matricial de la siguiente manera[26]

$$\begin{pmatrix} \overline{a}_{1} \\ \overline{a}_{2} \\ \cdot \\ \cdot \\ \overline{a}_{n} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} c_{11} & 0 & \cdot & \cdot & 0 \\ c_{21} & c_{22} & \cdot & \cdot & 0 \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 \\ c_{n1} & c_{n2} & \cdot & \cdot & c_{nn} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} N_{10} \\ N_{20} \\ \cdot \\ \cdot \\ N_{n0} \end{pmatrix}$$
(2.33)

multiplicando a la izquierda ambos miembros de la ecuación (2.31) por la inversa de la cuadrada de coeficientes se obtiene la matriz con los valores de las concentraciones  $N_{n0}$  en términos de parámetros conocidos.

$$\begin{pmatrix} c_{11} & 0 & . & . & 0 \\ c_{21} & c_{22} & . & . & 0 \\ . & . & . & . & 0 \\ . & . & . & . & 0 \\ c_{n1} & c_{n2} & . & . & c_{nn} \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} \overline{a}_1 \\ \overline{a}_2 \\ . \\ . \\ \overline{a}n \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} N_{10} \\ N_{20} \\ . \\ . \\ N_{n0} \end{pmatrix}$$
(2.34)

Estas ecuaciones constituyen un sistema de ecuaciones lineales inhomogéneas donde las incógnitas son las cantidades  $N_{0n}$  y pueden ser determinadas de manera unívoca midiendo la actividad media de los diferentes elementos en intervalos fuera del equilibrio para que el sistema no sea indeterminado, suponiendo el caso que estos elementos posean líneas observables.

## Capítulo 3

# Marco teórico. Interacción de fotones, electrones y positrones con la materia

El principio de funcionamiento de los detectores de radiación se basa en la interacción directa o indirecta de las partículas que se desea detectar, con la materia que constituye el detector propiamente dicho. En este mecanismo de interacción, son fundamentales las secciones eficaces de cada proceso en particular. A la hora de diseñar un método de simulación de transporte de radiación deben tomarse en cuenta los principales mecanismos o historias que las partículas sostienen hasta entregar una cierta cantidad de energía al detector. En este capítulo, se trata someramente la fundamentación teórica del funcionamiento de los detectores de radiación gamma, lo cual tiene que ver con la interacción de partículas cargadas y fotones con la materia, y se obtiene una expresión para el espectro de simultaneidad a partir de espectros simulados independientemente. Estas expresiones, son luego usadas en el Capítulo 7.

#### 3.1. Introducción

Los fotones gamma se producen por lo general, como consecuencia del decaimiento de núcleos radiactivos. Dado que los niveles de energía de los estados nucleares son muy energéticos, los fotones emitidos en transiciones nucleares, son del orden de los cientos o miles de keV. Los fotones emitidos en estos decaimientos, pueden interactuar con el medio que los contiene (fuentes) y también con el detector mismo. Los detectores de radiación gamma, miden la energía entregada por estos fotones y la clasifican[20]. El resultado, es un espectro que representa la probabilidad de que un fotón con energía

E emitido desde la fuente, interactúe con el detector y le transfiera una cantidad de energía comprendida entre E y E + dE.

En la práctica, por lo general todo proceso de interacción de fotones con la materia es también un proceso de interacción de electrones y positrones con la materia. Los fotones primarios producen partículas secundarias como electrones y positrones, aunque a energías muy altas, pueden producirse también protones o neutrones. Por consiguiente, cuando se simula transporte de fotones, es más apropiado hablar de transporte combinado.

Las partículas secundarias cargadas, interactúan a su vez con la materia por medio de colisiones las cuales pueden producir ionización, fotones de bremsstrahlung, fotones característicos, o fotones de aniquilación en el caso de positrones. La energía total transferida al detector, es la suma de las energías entregadas por cada una las partículas involucradas en el proceso.

La interacción de los fotones con la materia se puede dividir en dos grupos: por un lado, los procesos de absorción, y por otro lado, los procesos de dispersión. Entre los procesos de absorción podemos ubicar la foto-absorción a bajas energías, el efecto fotoeléctrico atómico, la creación de pares y el efecto fotonuclear. Entre los procesos de dispersión, podemos considerar la dispersión elástica Thomson o Rayleigh, y la dispersión incoherente o Compton.

La probabilidad de interacción de un fotón de energía  $E = h\nu$  está dada por la sección eficaz correspondiente al proceso en cuestión. Por su parte, la interacción de positrones y electrones con la materia se puede dividir en colisiones elásticas e inelásticas.

#### **3.2.** Absorción de fotones

La absorción de fotones puede tener lugar en átomos, moléculas, sistemas nucleares y en el campo de núcleos o electrones[27][28]. En las reacciones de absorción, un fotón incidente desaparece y subsecuentemente otro fotón puede emerger del sistema como resultado de la desexcitación que involucra el reordenamiento de la configuración interna del absorbente[29]. Las reacciones de absorción de fotones son inelásticas, y las partículas secundarias emergentes son a veces muy energéticas y depositan su energía en el medio circundante mediante colisiones o bremstrahlung. A continuación, consideramos los procesos de absorción de fotones más importantes.

#### 3.2.1. Absorción de fotones a bajas energías

En la región de bajas energías fotónicas menores a 0.5 keV la interacción es básicamente con los electrones de valencia o con electrones débilmente ligados. A energías mayores, el efecto fotoeléctrico tiene lugar con electrones más fuertemente ligados y se llama efecto fotoeléctrico atómico y constituye una de las reacciones de absorción más importantes.

La absorción a bajas energías o foto-absorción, es gobernada principalmente por la interacción del campo eléctrico del fotón incidente con el momento dipolar molecular del material[30], otros momentos eléctricos o magnéticos, son de menor importancia. En líquidos y gases la foto-absorción puede tener lugar cuando la absorción del fotón induce una transición entre dos estados cuánticos ligados de un átomo o molécula, este proceso se denomina foto-excitación. Si la energía es suficiente un electrón puede escapar del átomo o de la molécula como una partícula libre.

Para absorbentes moleculares la absorción puede inducir disociación de la ligadura química y producir fragmentos moleculares con electrones no apareados llamados radicales libres. Cuando los átomos forman parte de un arreglo regular como en el caso de sólidos cristalinos, los niveles de energía de los átomos individuales son perturbados por los campos de los átomos vecinos y los niveles de energías se aproximan hasta transformarse en bandas casi continuas separadas por brechas llamadas gaps.



Figura 3.1: Niveles de energía en sólidos

La banda de mayor energía completamente llena se llama banda de valencia. La banda que le sigue en energía se llama banda de conducción y está separada de la banda de valencia por una brecha prohibida. La Figura 3.1[31] ilustra la estructura cuántica de bandas de energía de un sólido cristalino comparada con la correspondiente estructura de un átomo del mismo

material aislado.

Las excitaciones interbandas en sólidos cristalinos, involucran cambios de energía de un electrón desde una banda de menor energía a otra de mayor energía. El proceso más común de excitación es el pasaje de un electrón desde la banda de valencia a la banda de conducción[32]. Este proceso, deja una vacancia o agujero en la banda de valencia por tanto la fotoabsorción en sólidos cristalinos produce vacancias y electrones libres llamados pares hueco-electrón. Este fenómeno, constituye el principio de funcionamiento de los detectores semiconductores de fotones como los detectores de GeHP.

A muy bajas energías pueden ocurrir transiciones entre dos niveles de una misma banda este proceso es especialmente importante en metales. El efecto fotoeléctrico superficial, es un proceso de bajas energías que puede ocurrir en absorbentes sólidos a energías ópticas e infrarrojas. En este caso, el electrón escapa desde la superficie del cristal si logra vencer la función trabajo del mismo. Existen importantes dispositivos usados en detectores de fotones que utilizan el efecto fotoeléctrico superficial un ejemplo, son los tubos fotomultiplicadores.

#### 3.2.2. Efecto fotoeléctrico atómico

El efecto fotoeléctrico atómico, es la eyección de un electrón desde un átomo después de la absorción de un fotón[31]. El efecto fotoeléctrico atómico, es el proceso de absorción de fotones dominante en la región de energías intermedias  $0.5 \ keV \leq h\nu \leq 1.0 \ MeV$ . Para que sea posible el efecto fotoeléctrico, el electrón debe estar ligado. La Figura 3.2[31] ilustra el proceso.

La sección eficaz para el efecto fotoeléctrico, puede ser obtenida mediante cálculos cuánticos usando funciones de onda aproximadas para el electrón ligado y para el electrón emergente. Una expresión teórica no relativista para la sección eficaz diferencial por unidad de ángulo para la eyección de electrones de la capa K para ángulos del electrón eyectado respecto de la dirección del fotón incidente entre  $\theta'_e$  y  $\theta'_e + d\theta'_e$  está dada por

$$\frac{d\sigma_K(h\nu, T', \theta'_e)}{d\theta'_e} = 8\sqrt{2}\pi r_0^2 \alpha^4 Z^5 \left(\frac{m_e c^2}{h\nu}\right)^{7/2} \frac{\cos^3(\theta'_e)}{\left[1 - \left(\frac{p_e c}{m_e c^2}\right)\cos(\theta'_e)\right]^4} \quad (3.1)$$



Figura 3.2: Efecto fotoeléctrico atómico

Cuando la energía del fotón es del orden de  $m_ec^2 keV$  o mayor, deben usarse funciones de onda relativistas para los electrones ligados K y el electrón emergente, después del proceso. Una expresión para la sección eficaz para el efecto fotoeléctrico válida para energías relativistas y para elementos livianos puede escribirse[33]

$$\sigma_{K} = \sigma_{0} \frac{3}{2} \frac{Z^{5}}{137^{4}} \left( \frac{m_{e}c^{2}}{h\nu + m_{e}c^{2}} \right)^{2} \left( \gamma^{2} - 1 \right)^{3/2} \times \left[ \frac{4}{3} + \frac{\gamma(\gamma - 2)}{\gamma + 1} \left( 1 - \frac{1}{2\gamma\sqrt{\gamma^{2} - 1}} ln \left( \frac{\gamma + \sqrt{\gamma^{2} - 1}}{\gamma - \sqrt{\gamma^{2} - 1}} \right) \right) \right]$$
(3.2)

donde 
$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}}$$

y donde  $\sigma_0$ , representa la sección eficaz de dispersión para fotones de baja energía por un electrón libre en reposo es decir, la sección eficaz de dispersión total de Thomson.

$$\sigma_0 = \frac{8\pi}{3} r_0^2 = 6,651 \times 10^{-25} \quad cm^2 \tag{3.3}$$

Para energías muy altas,  $m_e c^2 \ll h\nu$  la ecuación (3.2) se reduce a

$$\sigma_K = \frac{3}{2} \frac{Z^5}{137^4} \frac{m_e c^2}{h\nu} \sigma_0 \tag{3.4}$$

#### **3.2.3.** Efecto Fotonuclear

La absorción fotonuclear es la absorción de un fotón y la eyección de una o más partículas desde el núcleo. En el proceso, luego de la desaparición del fotón, pueden ser emitidos un neutrón o un protón, pero también es posible la emisión de múltiples nucleones es decir, dos protones, dos neutrones o eventualmente un protón y un neutrón etc[34]. Estos procesos, son posibles siempre y cuando la energía del fotón incidente sea suficientemente grande. Posterior a la eyección de las partículas nucleares, puede producirse la emisión de fotones gamma desde el núcleo residual si este queda en un estado excitado. En una reacción fotonuclear, debe cumplirse la conservación del momento y la energía. Una reacción fotonuclear se simboliza como

$$X + \gamma \longrightarrow b + Y \tag{3.5}$$

donde X hace referencia al núcleo blanco y  $\gamma$  al fotón incidente y donde b e Y se refieren a la partícula eyectada y al núcleo residual respectivamente. La energía mínima para que una reacción foto nuclear pueda producirse es

$$h\nu_{min} = BE\left(1 + \frac{BE}{2M_X c^2}\right) \tag{3.6}$$

donde BE es la energía de ligadura del nucleón emergente b y  $M_X c^2$  es la energía en reposo del núcleo blanco X[34]. La sección eficaz de absorción fotonuclear total puede escribirse como la suma de todas las reacciones posibles[34] antes mencionadas, es decir

$$\sigma_{PN} = \sigma_{\gamma n} + \sigma_{\gamma p} + \sigma_{\gamma 2 p} + \sigma_{\gamma 2 n} + \sigma_{\gamma p n} + \cdots$$
(3.7)

La sección eficaz total de absorción fotonuclear  $\sigma_{PN}$  tiene un máximo de absorción para energías fotónicas cercanas a 20 MeV y elementos livianos y es llamada gran resonancia (GR). Para núcleos pesados, la gran resonancia puede escribirse como

$$\sigma(\nu) = \frac{h^2 \alpha}{M} \left(\frac{NZ}{A}\right) \frac{\Gamma/2\pi}{\left(h\nu - h\nu_p\right) + \left(\Gamma/2\right)^2}$$
(3.8)

donde  $\alpha$  es la constante de estructura fina, M es la masa del nucleón, N es el número de neutrones del núcleo blanco, Z es el número atómico y donde A, es el número másico.  $\Gamma$  es el ancho a la mitad del máximo de la gran resonancia. Además,  $\nu_P$  hace referencia a la energía del pico de resonancia.

#### 3.2.4. Producción de pares y aniquilación de positrones

#### a) Creación de pares por fotones gamma

Cuando fotones con energías superiores a 1,022 MeV interactúan con la materia, uno de los procesos importantes a tener en cuenta es la producción de pares. En la producción de pares, un fotón incidente desaparece en la vecindad de un núcleo o de un electrón atómico y se produce un par electrón-positrón[27][35]. El positrón se mueve a través del medio una pequeña distancia (décimas de mm dependiendo del material) y luego, se aniquila produciendo dos fotones de aniquilación. En algunas ocasiones, puede producirse un solo fotón. Uno de los fotones de aniquilación, eventualmente puede alcanzar el detector y crear un pico a una energía cercana a los 511 keV. La energía mínima necesaria para producir un par electrón-positrón está dada por[31]

$$E_{min} = h\nu_{min} = 2m_e c^2 \left[ 1 + \frac{2m_e c^2}{2M_X c^2} \right]$$
(3.9)

donde  $M_X$  es la masa del núcleo o electrón cerca del cual, se produjo el fenómeno. Si el proceso ocurre en el campo de un núcleo cuya masa es mucho mayor que la de un electrón  $M_X >> m_e c^2$  la energía umbral se reduce a  $2m_e c^2 = 1,022$  MeV. Cuando el proceso ocurre en el campo de un electrón atómico, el umbral de energía es  $4m_e c^2 = 2,044$  MeV La Sección eficaz diferencial para la creación de un positrón de energía total entre  $E_+$  y  $E_+ + dE_+$  y un electrón con energía total  $E_-$  por un rayo gamma de energía  $E = h\nu$  en el campo de coulomb de un núcleo sin tomar en cuenta el apantallamiento de los electrones está dada por

$$\sigma_{E_{+}}dE_{+} = \frac{Z^{2}r_{0}^{2}}{137} \frac{p_{+}p_{-}}{(h\nu)^{3}} dE_{+} \left\{ -\frac{4}{3} - 2E_{+}E_{-} \frac{\left(p_{+}^{2} + p_{-}^{2}\right)}{p_{+}^{2}p_{-}^{2}} + m_{e}^{2}c^{4} \left(\frac{E_{+}\epsilon_{-}}{p_{-}^{3}} + \frac{\epsilon_{+}E_{-}}{p_{+}^{3}} - \frac{\epsilon_{+}\epsilon_{-}}{p_{+}p_{-}}\right) + L \left[ \frac{(h\nu)^{2}}{p_{+}^{3}p_{-}^{3}} \left(E_{+}^{2}E_{-}^{2} + p_{+}^{2}p_{-}^{2}\right) - \frac{8E_{+}E_{-}}{3p_{+}p_{-}} - \frac{(h\nu)m_{e}^{2}c^{4}}{2p_{+}p_{-}} \left(\frac{E_{+}E_{-} - p_{-}^{2}}{p_{-}^{3}}\epsilon_{-} + \frac{E_{+}E_{-} - p_{+}^{2}}{p_{+}^{3}}\epsilon_{+} + \frac{2(h\nu)E_{+}E_{-}}{p_{+}^{2}p_{-}^{2}}\right) \right] \right\}$$
(3.10)

donde

$$\epsilon_{+} = 2ln\left(\frac{E_{+} + p_{+}}{m_{e}c^{2}}\right) \qquad L = 2ln\left(\frac{E_{+}E_{-} + p_{+}p_{-} + m_{e}c^{2}}{h\nu m_{e}c^{2}}\right) \quad (3.11)$$

$$\Phi = \frac{Z^2}{137} r_0^2 = Z^2 \times 5,793 \times 10^{-28} \ cm^2 \tag{3.12}$$

 $p_+$  y  $p_-$  son el momento del positrón y electrón respectivamente. La ecuación (3.10) dá una distribución simétrica entre el electrón y el positrón, sin embargo, esto no es del todo así dado que el positrón es repelido por el núcleo al tiempo que el electrón es atraído. Esto, produce una asimetría en la distribución de energía favoreciendo una mayor energía por parte del positrón.

b) Aniquilación de positrones

La aniquilación, es el proceso inverso a la creación de pares. Este proceso, puede ser interpretado como la transición de un electrón desde un estado con energía positiva a un estado de energía negativa[27][36]. La energía emitida en el proceso, es en la forma de radiación electromagnética. El caso más importante, es aquel en el cual un positrón es aniquilado tras colisionar con un electrón libre[33][37]. En el proceso son emitidos dos cuantos de radiación o fotones; pero si el electrón está ligado puede ser emitido un solo fotón. La sección eficaz de aniquilación del positrón promediada sobre todas las direcciones de polarización de los fotones salientes está dada por[33]

$$d\sigma_{ap} = \frac{e^4 d\Omega}{4p_0 E_0} \left[ \frac{E_0^2 + p_0^2 + p_0^2 sen^2(\theta)}{E_0^2 - p_0^2 cos^2(\theta)} - \frac{2p_0^2 sen^4(\theta)}{\left(E_0^2 - p_0^2 cos^2(\theta)\right)^2} \right]$$
(3.13)

donde  $\theta$  es el ángulo entre la dirección del electrón y uno de los dos fotones de aniquilación, mientras que  $E_0$  y  $p_0$  son la energía y el momento del electrón respectivamente los cuales, son iguales en módulo a la energía y al momento del positrón[33]. La probabilidad total de aniquilación de positrones se obtiene integrando sobre los ángulos  $\theta$  y  $\phi$ , dado que la sección eficaz no depende explícitamente de  $\phi$ , su contribución es agregar un factor  $2\pi$ . La Figura 3.3 muestra la distribución angular de los fotones emitidos

$$\sigma_{ap} = \frac{\pi e^4}{4p_0 E_0} \left[ 2\left(\beta^2 - 2\right) + \frac{3 - \beta^4}{\beta} ln\left(\frac{1+\beta}{1-\beta}\right) \right]$$
(3.14)

$$donde \quad \beta = \frac{\nu_0}{c} = \frac{p_0}{E_0} \tag{3.15}$$

Las expresiones anteriores, son válidas para un electrón y un positrón con momentos iguales y opuestos. Un caso de particular importancia, es aquel en el cual el electrón puede ser considerado casi en reposo mientras que el positrón tiene una cierta energía cinética (aniquilación en vuelo). En este caso, conviene tomar como referencial al sistema en el que el electrón está en reposo. En estas condiciones, la probabilidad se obtiene mediante una transformación de Lorentz desde el sistema centro de masa. Dado que la sección eficaz, es un invariante de Lorentz reemplazando en la ecuación (3.14) se obtiene[33]

$$\sigma_{ap} = \pi r_0^2 \frac{1}{\gamma + 1} \left[ \frac{\gamma^2 + 4\gamma + 1}{\gamma^2 - 1} ln \left( \gamma + \sqrt{\gamma^2 - 1} \right) - \frac{\gamma + 3}{\sqrt{\gamma^2 - 1}} \right] \quad (3.16)$$

donde 
$$\gamma = \frac{E_+}{m_e c^2}$$

y donde  $E_+$  es la energía del positrón en el sistema donde el electrón está en reposo.



**Figura** 3.3: Izquierda: Distribución angular de fotones producidos por aniquilación en vuelo de positrones. Derecha: sección eficaz de aniquilación por electrón en función de la energía cinética del positrón[38]

#### 3.3. Dispersión de fotones

#### 3.3.1. Dispersión elástica. Sección eficaz Thomson y Rayleigh

La dispersión elástica de una onda electromagnética por una partícula cargada libre usualmente un electrón, es conocida como dispersión Thomson. En la dispersión elástica, el campo de la onda incidente hace oscilar al electrón el cual, luego reemite radiación como consecuencia de la oscilación[30]. Un electrón, puede ser considerado libre cuándo la energía del fotón incidente es mucho mayor que la energía de ligadura del electrón pero mucho menor que la energía en reposo del electrón  $m_ec^2$  en este caso, la energía del fotón dispersado es igual a la del fotón incidente dado que la energía de retroceso puede ser despreciada si el momento de retroceso es despreciable. La sección eficaz del proceso fue deducida primeramente por Thomson mediante un tratamiento clásico y está dada por

$$\frac{d\sigma(\theta)}{d\Omega} = \left(r_0^2/2\right) \left(1 + \cos^2(\theta)\right) \tag{3.17}$$

donde  $\theta$  es el ángulo entre la dirección del fotón incidente y el fotón dispersado y  $r_0$  es el radio clásico del electrón. Integrando sobre todos los ángulos se obtiene la sección eficaz total para la dispersión Thomson

$$\sigma_T = \frac{8}{3\pi} r_0^2 \tag{3.18}$$

A bajas energías, la longitud de onda de los fotones son comparables al diámetro de los átomos del material con los que están interactuando. En estas condiciones, todos los electrones en el átomo dispersor son inducidos a oscilar en fase y reemitir en fase. Cuando todo el átomo actúa como dispersor más que los electrones individuales la reacción se denomina dispersión coherente o Rayleigh[31]. La sección eficaz para este proceso está dada por

$$\frac{d\sigma(\theta)}{d\Omega} = \left(r_0^2/2\right) \left(1 + \cos^2(\theta)\right) \left(F(q, Z)\right)^2 \tag{3.19}$$

donde, la función F(q, Z) es llamado el factor de forma atómico[39]. El factor de forma atómico puede ser expresado como la transformada de Fourier de la densidad de carga atómica  $\rho(r)$ 

$$F(q,Z) = 4\pi \int_0^\infty \rho(r) \frac{sen(qr/\hbar)}{qr/\hbar} r^2 dr \qquad (3.20)$$

el argumento q es definido como

$$q = 2(h\nu/c)sen(\theta/2) \tag{3.21}$$

#### 3.3.2. Dispersión incoherente o Compton

La dispersión compton es un proceso por el cual un fotón colisiona con un electrón y le imparte a éste, una cierta cantidad de energía[40]. El resultado de la interacción, es un electrón saliente con cierta energía cinética T y un fotón con energía menor que la inicial formando un ángulo  $\theta$  respecto de la dirección incidente. Si se desprecian los efectos de la ligadura del electrón, el proceso puede ser considerado como la simple colisión entre dos partículas[40]. Aplicando las leyes de conservación de la energía y el momento, se puede obtener la siguiente relación entre las energías  $h\nu$  del fotón incidente, la energía del fotón saliente  $h\nu_0$  y el ángulo del fotón dispersado  $\theta$  respecto de la dirección incidente[40][41][30].

$$h\nu = \frac{h\nu_0}{1 + (h\nu_0/m_e c^2)(1 - \cos(\theta))}$$
(3.22)

La sección eficaz para la dispersión compton de un fotón por un electrón libre dentro de un ángulo sólido  $d\Omega$  fue primeramente deducida por Klein y Nishina[33][37] para fotones no polarizados puede escribirse

$$\frac{d\sigma_{KN}(h\nu,\theta)}{d\Omega} = \frac{r_0^2}{2} \left(\frac{h\nu}{h\nu_0}\right)^2 \left(\frac{h\nu_0}{h\nu} + \frac{h\nu}{h\nu_0} - sen^2\theta\right)$$
(3.23)

sustituyendo en esta ecuación los valores de  $h\nu$  por los dados en la ecuación (3.22) obtenemos la sección eficaz de Klein Nishina en términos del ángulo  $\theta$ 

$$\frac{d\sigma_{KN}(\theta)}{d\Omega} = \frac{r_0}{2} \frac{(1+\cos^2\theta)}{\left[1+\alpha_0 \left(1-\cos\theta\right)\right]^2} \left\{ 1 + \frac{\alpha_0^2 \left(1-\cos\theta\right)^2}{\left(1+\cos^2\theta\right) \left[1+\alpha_0 \left(1-\cos\theta\right)\right]} \right\}$$
(3.24)

 ${\rm donde}$ 

$$\alpha_0 = \frac{h\nu_0}{m_e c^2} \tag{3.25}$$

para valores de  $\alpha_0 \ll 1$  la expresión (3.24) se reduce a la expresión clásica de Thompson (3.17). La expresión (3.23) es válida para electrones libres, cuando el fotón interactúa con electrones ligados de las capas más profundas, la ecuación (3.24) debe ser corregida. Para esto, debemos multiplicar la ecuación (3.24) por la función de dispersión incoherente S(x, Z)[42]. La ecuación debe ser reescrita como

$$d\sigma_{is} = d\sigma_{KN} S(x, Z) \tag{3.26}$$

donde Z es el número atómico y x está definida como

$$x = \frac{\nu}{c}sen(\theta/2) \tag{3.27}$$

la corrección por efectos de ligadura atómica es especialmente importante por debajo de 1 MeV.

## 3.4. Fuente de ${}^{60}Co$ . Desarrollos teóricos para obtener el espectro de simultaneidad o coincidencia por simulación.

#### 3.4.1. Espectro de simultaneidad o coincidencia

Lo que haremos en esta sección, será aplicado en el Capítulo 7 de resultados. En el Capítulo 4 se harán consideraciones sobre correcciones por efectos de simultaneidad en el número de cuentas del fotopico. En esta sección, nos planteamos encontrar la forma completa del espectro de simultaneidad de una fuente binaria de  $^{60}Co$ . Existen publicaciones sobre el tema[43][44][45], pero en este caso, se considera la forma completa del espectro y se obtiene una expresión para el espectro de coincidencia en términos de los espectros simulados individualmente.

Cuando dos fotones incidentes interactúan simultáneamente con un detector dentro de un intervalo de tiempo suficientemente corto de modo tal que el detector no los puede resolver separadamente, son procesados como un solo pulso cuya energía es igual a la suma de las energías entregadas por cada uno de los dos fotones individualmente. Este efecto, es particularmente notable en el caso de fuentes que contienen isótopos que emiten múltiples cascadas de rayos gamma en su decaimiento. Si no hay estados isoméricos involucrados, el tiempo de vida media del estado intermedio es generalmente tan corto que los dos fotones son detectados simultáneamente; consecuentemente, se obtiene un espectro de coincidencia que se superpone con el espectro de las líneas de energía intervinientes.

El espectro de coincidencia, consiste en un pico suma producto de la absorción total de la energía de los dos fotones incidentes; y un continuo compton debido a la transferencia parcial de energía de una, o de ambas partículas al detector. Los programas que simulan transporte de radiación por lo general, no contemplan efectos de simultaneidad dado que simulan una partícula por vez[39][46][23]. No obstante, es posible obtener el espectro de coincidencia a partir del espectro simulado de cada partícula individualmente[47]. Para hacer esto con más precisión, debe tomarse en cuenta la correlación angular entre los fotones en cuestión, la correlación angular dependerá del esquema de decaimiento de cada isótopo emisor en particular.

Es de esperar, que en los casos donde la función correlación angular es de variación suave, el espectro total no diferirá mucho del obtenido simulando las dos partículas independientemente. Pero si este no es el caso, es necesario tener en cuenta el efecto de la correlación, arrojando la segunda partícula en una dirección dada por la function de correlación. Del mismo modo, cuando la muestra es de gran tamaño debe tenerse en cuenta que los dos fotones salen desde un mismo núcleo o punto interior de la fuente. Por este motivo, el segundo fotón debe ser emitido desde el mismo sitio elegido para el primero. Cuando la fuente es pequeña y la energía de los fotones suficientemente alta, puede suponerse que el efecto de arrojar las partículas desde puntos distintos no afectará en absoluto el espectro resultante. En el caso de una fuente volumétrica, es necesario modificar la definición de la fuente en el código para adaptarla a esta situación.

En esta sección, se considera una fuente pequeña, aunque no puntual, de  ${}^{60}Co$  donde las consideraciones anteriores pueden ser aplicadas. Se obtiene, una expresión para el espectro de coincidencia de fotones gamma emitidos a partir de los espectros simulados de cada energia fotónica individualmente. Se aplica esta expresión, para obtener el espectro de coincidencia de la fuente binaria cuasi puntual de  ${}^{60}Co$  se lo convoluciona con los parámetros correspondientes y se lo compara con el espectro de la misma fuente, medido con un detector

## 3.4.1.1. Correlación angular entre fotones emitidos por un núcleo radiactivo

Tengamos dos fotones emitidos en cascada por un mismo núcleo en su decaimiento desde un estado con spin  $I_i$  a otro estado con spin  $I_f$  pasando a través de un estado intermedio I como se muestra en la Figura 3.4. Supongamos que en la primera transición, se emite un fotón  $\gamma_1$  mientras que en la segunda, se emite un fotón  $\gamma_2$ . Supongamos además, que ambas transiciones son puras, con multipolaridades  $L_1$  y  $L_2$  respectivamente. La función correlación angular entre los dos fotones emitidos es decir, la probabilidad de que el segundo fotón sea emitido formando un ángulo  $\theta$  respecto del primer fotón, está dado por la siguiente expresión[48][49][50]

$$W(\theta) = \sum_{\lambda=0}^{\lambda_{max}} A_{\lambda} P_{\lambda}(\cos(\theta))$$
(3.28)

Donde  $A_{\lambda}$  puede escribirse como el producto de los coeficientes de distribución angular  $A_{\lambda}^1 \ge A_{\lambda}^2$  correspondientes a la transición  $I_i^1 \longrightarrow I \ge I$  y a la transición de  $I \longrightarrow I_f$  respectivamente. El número  $\lambda_{max}$ , es igual al mínimo valor entre  $[2I, 2L_1, 2L_2]$  siendo  $L_1 \ge L_2$  las multipolaridades relacionadas con las transiciónes  $I_i \longrightarrow I \ge I$  y  $I \longrightarrow I_f$  respectivamente. Podemos por lo tanto escribir[51][52][53]

$$A_{\lambda} = A_{\lambda}^{1}(L_{1}, L_{1}, I_{i}, I)A_{\lambda}^{2}(L_{2}, L_{2}, I_{f}, I)$$
(3.29)

para una transición pura, los coeficientes están dados por

$$A_{\lambda}^{1}(L_{1}, L_{1}, I_{i}, I) =$$

$$F_{\lambda}(L_{1}, L_{1}, I_{i}, I) = (-1)^{I_{i}+I+1} (2L_{1}+1) [(2I_{i}+1) (2\lambda+1)]^{1/2} \times \left( \begin{array}{c} L_{1} & L_{1} & \lambda \\ 1 & -1 & 0 \end{array} \right) \left\{ \begin{array}{c} L_{1} & L_{1} & \lambda \\ I & I & I_{i} \end{array} \right\}$$
(3.30)

$$A_{\lambda}^{2}(L_{2}, L_{2}, I_{f}, I) =$$

$$F_{\lambda}(L_{2}, L_{2}, I_{f}, I) = (-1)^{I_{f}+I+1} (2L_{2}+1) [(2I_{f}+1) (2\lambda+1)]^{1/2} \times \left( \begin{array}{c} L_{2} & L_{2} & \lambda \\ 1 & -1 & 0 \end{array} \right) \left\{ \begin{array}{c} L_{2} & L_{2} & \lambda \\ I & I & I_{f} \end{array} \right\}$$
(3.31)

Los coeficientes con forma de matriz con paréntesis son llamados símbolos de Winer o coeficientes 3-j[48][49] y están definidos por la expresión

$$\begin{pmatrix} I & I' & K \\ M & M' & Q \end{pmatrix} = \frac{1}{(2K+1)^{\frac{1}{2}}} (-1)^{I-I'-Q} \langle IM, I'M' | K, -Q \rangle \qquad (3.32)$$

Por consiguiente

$$\begin{pmatrix} L_1 & L_1 & K \\ 1 & -1 & 0 \end{pmatrix} = \frac{\langle L'_1 1, L_1 - 1 | K, 0 \rangle}{(2K+1)^{\frac{1}{2}}}$$
(3.33)

Por su parte, los coeficientes con forma de llaves son llamados coeficientes de Racah[54][55] o símbolos 6j y están definidos como

$$\begin{cases} J_1 & J_2 & J_3 \\ j_1 & j_2 & j_3 \end{cases} = \sum_{M_i, m_i} (-1)^{\sum J_1 + \sum j_i + \sum m_i} \begin{pmatrix} J_1 & J_2 & J_3 \\ -M_1 & -M_2 & -M_3 \end{pmatrix} \times \\ \times \begin{pmatrix} J_1 & J_2 & J_3 \\ -M_1 & -M_2 & -M_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A & B & C \\ -M_1 & -M_2 & -M_3 \end{pmatrix}$$
(3.34)

Si la transición no es pura, es decir, vincula dos estados con multipolaridad mezcla de orden  $\delta_1$  y  $\delta_2$  dados por

$$\delta_1 = \frac{\langle I | L_1' | I_i \rangle}{\langle I_2 | L_1 | I_i \rangle} \quad y \quad \delta_2 = \frac{\langle I_2 | L_2' | I \rangle}{\langle I_2 | L_2 | I \rangle}$$
(3.35)

donde  $L'_1$  y  $L'_2$  son los ordenes multipolares mezcla de las transiciones primaria y secundaria respectivamente. Los coeficientes angulares en este caso son

$$A_{\lambda}^{1}(L_{1}, L_{1}', I_{i}, I) = \frac{F_{\lambda}(L_{1}, L_{1}, I_{i}, I) + 2\delta_{1}F_{\lambda}(L_{1}, L_{1}', I_{i}, I) + \delta_{1}^{2}F_{\lambda}(L_{1}', L_{1}', I_{i}, I)}{1 + \delta_{1}^{2}}$$
(3.36)

$$A_{\lambda}^{2}(L_{2}, L_{2}', I_{f}, I) = \frac{F_{\lambda}(L_{2}, L_{2}, I_{f}, I) + 2\delta_{2}F_{\lambda}(L_{2}, L_{2}', I_{f}, I) + \delta_{2}^{2}F_{\lambda}(L_{2}', L_{2}', I_{f}, I)}{1 + \delta_{2}^{2}}$$
(3.37)

En la bibliografía pueden encontrarse valores de los coeficientes  $F_{\lambda}$  para distintos decaimientos. Para el caso particular del  ${}^{60}Co$ , puede obtenerse una expresión suponiendo estados de spin  $j_1, j_2, j_3 = 4, 2, 0$  y suponiendo transiciones cuadrupolares la función distribución angular puede escribirse como

$$W(\theta) = \frac{5}{21\pi} \left( 1 + \frac{1}{8} \cos^2(\theta) + \frac{1}{24} \cos^4(\theta) \right)$$
(3.38)



Figura 3.4: Esquema de decaimiento del  $^{60}Co$ .



**Figura** 3.5: Función de correlación angular  $W(\theta)$  para el <sup>60</sup>Co. La línea azul representa a la función  $R(\theta) = 5/21\pi$  correspondiente a una distribución homogénea.

#### 3.4.1.2. Espectro de simultaneidad obtenido a partir de los espectros simulados

Sean dos fotones emitidos desde un mismo núcleo con energías iniciales  $E'_1$  y  $E'_2$  y con una cierta correlación angular entre ellos. Supongamos además, que los dos fotones (o sus fotones secundarios), interactúan con el detector dentro de un tiempo suficientemente corto como para que sean detectados simultáneamente. Puede ocurrir, que los dos fotones lleguen al detector sin haber interactuado previamente con otro cuerpo[20], y que luego interactúen con el detector, entregando toda su energía al mismo. La probabilidad de este proceso está dada por el producto de las eficiencias absolutas para cada uno de los fotones

$$P_{max} = \epsilon_{P_1} \epsilon_{P_2} \tag{3.39}$$

Es decir,  $P_{max}$  es la probabilidad conjunta de que cada fotón interactúe con

el detector y entregue toda su energía inicial al mismo. Por otro lado, puede ocurrir que uno o los dos fotones, entreguen una cantidad parcial de su energía  $E_1$  y  $E_2$  al detector; en este caso, la probabilidad conjunta de que los fotones entreguen una cantidad total de energía E será

$$P(E) = P_1(E_1)P_2(E_2) \tag{3.40}$$

Sujeto a la condición

$$E = E_1 + E_2 (3.41)$$

donde  $P_1(E_1)$  es la probabilidad de que el primer fotón entregue una cantidad de energía  $E_1$  y  $P_2(E_2)$  es la probabilidad de que el segundo fotón entregue una cantidad de energía  $E_2$  al detector respectivamente. De la ecuación (3.41) podemos escribir la (3.40) como[47]

$$P(E) = P_1(E_1)P_2(E - E_1)$$
(3.42)

La probabilidad total, debe contemplar todas las combinaciones posibles de  $E_1$  y  $E_2$  en la ecuación (3.40) por lo tanto, la probabilidad de que ambas partículas entreguen en conjunto una cantidad de energía al detector comprendida entre E y E + dE, estará dada por la convolución

$$P(E) = \int_0^E P_1(E_1) P_2(E - E_1) dE_1$$
(3.43)

Para un espectro discreto la ecuación (3.43) puede escribirse

$$P(E) = \sum_{E_1=0}^{E} P_1(E_1) P_2(E - E_1)$$
(3.44)

Dado que existe una relación unívoca entre la energía y el número de canal  $(m \circ n)$  podemos escribir la ecuación (3.44) en términos del número de canal

$$P(n) = \sum_{m_1=0}^{n} P_1(m_1) P_2(n - m_1)$$
(3.45)

n es el canal correspondiente a la energía E y  $m_1$  es el canal correspondiente a la energía  $E_1$ . La expresión completa para el espectro de coincidencia puede escribirse como: Espectro de simultaneidad teórico de una fuente de  $^{60}Co$ 

$$P(n) = \begin{cases} \sum_{m_1=0}^{n} P_1(m_1) P_2(n-m_1) & \text{para } n \le N \\ P_{max} = \epsilon_{P_1} \epsilon_{P_2} & \text{para } n = N \end{cases}$$
(3.46)

Esta expresión es válida tanto para el caso en que se tenga en cuenta la correlación, como para el caso donde no haya correlación angular entre las partículas. La correlación angular, debe estar implícitamente contemplada en la simulación con la cual se obtienen los espectros  $P_1$  y  $P_2$ . En el caso particular del <sup>60</sup>Co dado que la función correlación angular es de variación suave es de esperar que ambos resultados sean muy similares si se toma en cuenta o no la correlación angular.

## Capítulo 4

# Simulación Monte Carlo de sistemas de espectrometría gamma

Desde su implementación en el Laboratorio Nacional Los Álamos, el método Monte Carlo se ha convertido en una herramienta casi indispensable para calcular la eficiencia de sistemas de espectrometría gamma y existe abundante bibliografía al respecto[56][57][58][59]. Usualmente, los laboratorios de metrología de radiaciones utilizan fuentes calibradas para determinar la actividad de las muestras. Recientemente sin embargo, el uso de los programas de simulación de transporte de radiación ha ido creciendo y ha hecho posible el cálculo de parámetros tales como eficiencias de pico, eficiencias totales y el estudio de efectos que influyen o afectan la determinación de los espectros tales como efectos de coincidencia o efectos suma. Hay una cantidad de publicaciones en este contexto[60, 61]. En esta sección, hacemos una breve revisión de los principales ejes por donde pasa la investigación relacionada con la espectrometría gamma y la simulación de espectros gamma.

# 4.1. Efectos de auto-absorción en muestras volumétricas

Cuando se consideran muestras radiactivas volumétricas, una cierta fracción de los fotones emitidos es absorbido o dispersado en la misma sin llegar a interactuar con el detector[20]. Es importante por lo tanto, conocer cuál es la fracción de estos fotones emitidos que no llegan a interactuar. Los aspectos que más influyen en este contexto, van a ser un mayor coeficiente de atenuación lo cual, está directamente relacionado con la densidad del material que constituye la muestra y con el número atómico Z del material.

Tres son las geometrías más usadas por lo general en mediciones de la actividad de muestras ambientales; estas son la geometría cilíndrica(Figura 4.1), la de tipo pozo(Figura 4.2) y la Marinelli(Figura 4.6). En las tres geometrías, los efectos de absorción en la muestra suelen ser importantes según los casos, sobre todo en la primera y en la tercera en las cuales, por lo general las muestras son de gran tamaño[62].

Estos efectos, no son tenidos en cuenta si se toman en referencia al espectro de una muestra estándar o patrón con la misma geometría y forma que la muestra analizada. Estas condiciones muchas veces son difíciles o imposibles de cumplir y se hace necesario emplear métodos computacionales a los efectos de evaluar la eficiencia de pico o las correcciones a la eficiencia debidas a diferencias entre la muestra estándar y la muestra bajo estudio.

El factor de auto-atenuación  $Fa(\mu, E)$  para una muestra con coeficiente de atenuación  $\mu$  se define como el cociente entre la eficiencia de pico de la muestra y la eficiencia de pico de una muestra de idéntica forma y tamaño, pero con coeficiente de atenuación despreciable (vacío)[58, 63].

$$F_a(\mu, E) = \frac{\epsilon(\mu, E)}{\epsilon_0(E)} \tag{4.1}$$

Existen algoritmos y programas diseñados para el cálculo de éste y otros factores de corrección. La Figura 4.3 muestra el factor de auto-atenuación en función del coeficiente de atenuación lineal calculado con el programa SELFATT[57].

Para mediciones con detectores de tipo pozo, el efecto de auto-absorción es menor que para el caso de geometría cilíndrica o Marinelli por ejemplo, debido a las pequeñas dimensiones de las muestras. El tamaño de las muestras usadas en este tipo de detector, es del orden de 0,5 a 3  $cm^3$  sin embargo, el efecto no es despreciable para fotones de baja energía y materiales de alto Z y alta densidad. La Figura 4.4[64] muestra una curva que compara los valores medidos y calculados de la eficiencia de pico para un detector tipo pozo con un cristal de Ge de 350  $cm^2$  para fuentes monocromáticas donde los efectos de simultaneidad pueden suponerse despreciables.

Como se dijo antes, la auto-atenuación en muestras pequeñas de alrededor de 1 o 2 cm de espesor medidas con detectores tipo pozo suele ser mucho menor que para muestras grandes del orden de 8 cm, 10 cm o más centímetros, usadas en otros tipos de geometrías como la Marinelli por ejemplo. Sin embargo, para fotones de baja energía o muestras con densidad alta la auto-atenuación puede ser considerable y llegar a ser del orden de 10 o más veces. Sima y Arnold [58] midieron cantidades de <sup>210</sup>Pb de actividad conocida diseminada en polvos de alta densidad por ejemplo  $Pb(NO_3)_2$  con densidad  $\rho = 2,57 \ g/cm^{-3}$ 



**Figura** 4.1: Geometría cilíndrica. En esta geometría, la muestra se sitúa encima del detector esta geometría suele ser usada para medir muestras grandes de tamaños diversos (alrededor de 5 cm o 10 cm aproximadamente).



**Figura** 4.2: Geometría tipo pozo. En esta geometría el detector rodea casi totalmente a la muestra, por este motivo suele usarse con muestras pequeñas del orden de 1 o 2 cm de espesor.

y  $PbSO_4$  con densidad  $\rho = 2,79~g~cm^{-3}$ . La eficiencia medida para la muestra de <sup>210</sup>Pb en  $PbSO_4$  fue 7,2% con un error de 3,3%, mientras que



**Figura** 4.3: Factores de auto-atenuación en función del coeficiente de atenuación lineal para una muestra cilíndrica de radio R = 3 cm para diferentes alturas de la muestra que van desde 0,5 cm a 10 cm.[57]



**Figura** 4.4: Eficiencia de pico medida y calculada para un detector tipo pozo y una solución estándar conteniendo radioisótopos emisores monocromáticos donde los efectos de coincidencia pueden suponerse despreciables[58].

para Pb en  $Pn(NO3)_2$  fue de 8,9 % con una incerteza estadística de 4,7 %, mientras que la eficiencia medida para una solución estándar de <sup>210</sup>Pb fue de 71,5 %. La figura 4.5 por su parte, muestra la eficiencia de pico en función de la energía para soluciones de <sup>60</sup>Co y <sup>134</sup>Cs calculados y medidos y los valores correspondientes a las mismas energías para fuentes monocromáticas donde los efectos de simultaneidad no están presentes. La Figura 4.3 muestra el factor de atenuación vs el coeficiente de atenuación lineal para muestras cilíndricas con un radio fijo de R = 3 cm y varias alturas obtenidas con el programa SELFATT desarrollado por el Laboratorio de Radiactividad Ambiental de La Universidad de Bucarest. Este programa, usa archivos de datos y coeficientes másicos de atenuación obtenidos con el programa XCOM[65] para la composición de interés. Los datos de entrada son (1) tipo de muestra, (2) densidad de la muestra, (3) número de detector, (4) geometría



**Figura** 4.5: Eficiencia de pico medida y calculada para soluciones estándar de  $^{134}Cs$  y  $^{60}Co$ . Los valores medidos están representados por los puntos (+) mientras que los valores experimentales para las mismas energías usando fuentes monocromáticas de las mismas energías están representados por los puntos rellenos[58]

### 4.2. Correcciones por efectos de simultaneidad

Los efectos de simultaneidad se producen cuando dos o más fotones interactúan simultáneamente con el detector dentro de un tiempo tan corto, que el mismo no los puede resolver separadamente.

Este efecto, puede producir ya sea una disminución en el número de cuentas netas de los fotopicos o bien, un aumento espurio en el número de cuentas de éstos cuando la energía del fotopico en cuestión, coincide con la suma de las energías de dos fotones menos energéticos que entregaron toda su energía al detector[45].

Pueden distinguirse dos tipos de efectos de coincidencia[45], por un lado los efectos de simultaneidad al azar o "random summing" los cuales, se refieren a la coincidencia de fotones emitidos por núcleos distintos. Por otro lado, puede distinguirse la simultaneidad de fotones emitidos por un mismo núcleo o "coincidence summing".



**Figura** 4.6: La figura ilustra un detector, rodeado casi por completo por una fuente radiactiva volumétrica (geometría Marinelli) y muestra fotones emitidos desde dos núcleos distintos representados por las flechas azules. Los fotones, sean emitidos desde un mismo núcleo o desde núcleos distintos, pueden eventualmente interactuar simultáneamente.

El efecto de coincidence summing, es importante en bajas tasas de conteo como en nuetro caso, mientras que el efecto de random summing es importante en altas tasas de conteo y no serán considerados aquí.

#### 4.2.1. Coincidencia en un esquema de decaimiento simple. Matriz de absorción y no-absorción.

Dado un sistema de decaimiento simple como el de la Figura 4.7, la probabilidad total de transición  $x_{ij}$  desde un estado inicial *i* a otro *j* puede escribirse como la suma de dos términos.

$$x_{ij} = c_{ij} + T_{ij} \tag{4.2}$$



Figura 4.7: Esquema de decaimiento beta simple[66]

donde  $c_{ij}$  es la probabilidad de transición radiactiva y  $T_{ij}$  es la probabilidad de conversión interna. El coeficiente de conversión interna total[34]  $\alpha_{ij}$  se define como el cociente entre la tasa de emisión de electrones de conversión interna  $T_{ij}$  y la tasa de emisión gamma  $c_{ij}$ [66]

$$\alpha_{ij} = \frac{T_{ij}}{c_{ij}} \tag{4.3}$$

de aquí

$$x_{ij} = c_{ij}(1 + \alpha_{ij}) \tag{4.4}$$

o bien

$$c_{ij} = \frac{x_{ij}}{1 + \alpha_{ij}} \tag{4.5}$$

La probabilidad de que un fotón gamma emitido en un decaimiento del nivel i al j sea computado en el fotopico (FEP) es

$$a_{ij} = c_{ij}\epsilon^P_{ij} = \frac{x_{ij}\epsilon^P_{ij}}{1 + \alpha_{ij}}$$

$$\tag{4.6}$$

donde  $\epsilon^P_{ij}$  es la eficiencia de pico del fotón emitido en la transición  $i\to j$ . Los coeficientes  $a_{ij}$  definen una matriz A triangular inferior, cuyas componentes

son la probabilidad de que un fotón emitido en una transición del nivel *i* al *j* sea computado en el fotopico. Por otro lado, la probabilidad de que el fotón no sea detectado si no se toman en cuenta los fotones  $K_{\alpha,\beta}$  de conversión interna es[66]

$$b_{ij} = x_{ij} \left( 1 - \frac{\epsilon_{ij}^T}{1 + \alpha_{ij}} \right) \tag{4.7}$$

donde  $\epsilon_{ij}^T$  es la eficiencia total de la transición  $i \to j$  y representa la probabilidad de que un fotón emitido por la fuente en dicha transición, interactúe con el detector y entregue toda su energía. Los coeficientes  $b_{ij}$  definen una matriz B triangular inferior cuyas componentes son la probabilidad de que el fotón emitido no sea detectado. La probabilidad  $\tilde{S}_{21}$  de que un fotón sea contabilizado en el fotopico de energía igual a la emitida en la transición  $2 \to 1$  puede escribirse[45]

$$\hat{S}_{21} = f_2 a_{21} b_{10} \tag{4.8}$$

mientras que el número de cuentas  $S_{21}$  del fotopico correspondiente a la transición  $2 \rightarrow 1$  puede escribirse[66]

$$S_{21} = \widetilde{S}_{21}R = f_2 \frac{x_{21}\epsilon_{21}^p}{(1+\alpha_{21})} x_{10} \left[1 - \frac{\epsilon_{10}^T}{(1+\alpha_{10})}\right]R$$
(4.9)

donde R es la actividad de la fuente. Análogamente, la probabilidad de que el fotón emitido en la transición  $1\to 0$  sea computado en el fotopico será

$$\widetilde{S}_{10} = f_1 a_{10} + f_2 b_{21} a_{10} \tag{4.10}$$

y el número de cuentas del fotopico correspondiente a dicha transición

$$S_{10} = \widetilde{S}_{10}R = \left\{ f_1 \frac{x_{10}\epsilon_{10}^p}{(1+\alpha_{10})} + f_2 x_{21} \left[ 1 - \frac{\epsilon_{21}^T}{(1+\alpha_{21})} \right] \frac{x_{10}\epsilon_{10}^p}{(1+\alpha_{10})} \right\} R \quad (4.11)$$

Por último, la probabilidad de que los fotones emitidos en la transición 2  $\to$  0 sean computados en el pico $\widetilde{S}_{20}$ será

$$\widetilde{S}_{20} = f_2 a_{20} + f_2 a_{21} a_{10} = f_2 \left( a_{20} + \left[ A^2 \right]_{20} \right)$$
(4.12)

mientras que el número de cuentas de dicho fotopico será

$$S_{20} = \widetilde{S}_{20}R = \left\{ f_2 \frac{x_{20}\epsilon_{20}^p}{(1+\alpha_{20})} + f_2 \frac{x_{21}\epsilon_{21}^p}{(1+\alpha_{21})} \frac{x_{10}+\epsilon_{10}^p}{(1+\alpha_{10})} \right\} R$$
(4.13)

Podemos observar que en las ecuaciones (4.8), (4.10) y (4.12) aparecen las compontes de las matrices  $A \ y \ B \ y$  sus potencias[66]. Basándose en consideraciones como estas, se dedujeron algunos métodos matriciales para plantear las ecuaciones de conteo en decaimientos complejos[67].

# 4.2.2. Decaimiento beta complejo. Método matricial de Semkow

Para un decaimiento beta arbitrario como el de la Figura 4.8 se debe cumplir[67]

$$\sum_{i=0}^{j-1} x_{ji} = 1 \quad donde \quad j > i \quad i = 0, 1, \dots, n-1$$
(4.14)



Figura 4.8: Esquema de decaimiento beta complejo

con matriz de probabilidad

$$X = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & . & 0 \\ x_{10} & 0 & 0 & . & 0 \\ x_{20} & x_{21}. & . & . \\ . & . & . & . \\ x_{n0} & x_{n1} & . & x_{nn-1} & 0 \end{pmatrix}$$
(4.15)

si definimos una matriz S cuyas componentes representan el número de cuentas del fotopico correspondiente a cada transición  $i \to j$ .

$$S = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & . & 0 \\ s_{10} & 0 & 0 & . & 0 \\ s_{20} & s_{21} & . & . & . \\ . & . & . & . & . \\ s_{n0} & s_{n1} & . & s_{nn-1} & 0 \end{pmatrix}$$
(4.16)

Puede demostrarse[66][67], que es posible escribir la matriz S como

$$S = RN\widetilde{A}M \tag{4.17}$$

donde R es la actividad de la muestra y  $\widetilde{A}$  es la suma de las primeras potencias de la matriz de absorción A cuyas componentes están definidas por la ecuación (4.6)

$$\widetilde{A} = \sum_{k=1}^{n} A^k \tag{4.18}$$

mientras que  $\widetilde{B}$  está dada por

$$\widetilde{B} = I + \sum_{k=1}^{n} B^k \tag{4.19}$$

donde I es la matriz identidad y  $B^k$  son las potencias de la matriz de noabsorción B definida por la ecuación (4.7). M es una matriz diagonal definida en términos de la matriz  $\tilde{B}$ 

$$M = \begin{pmatrix} \widetilde{B}_{00} & 0 & 0 & . & 0 & 0 \\ 0 & \widetilde{B}_{10} & 0 & . & . & 0 \\ 0 & 0 & \widetilde{B}_{20} & . & . & 0 \\ . & . & . & . & . & . \\ 0 & 0 & 0 & . & . & \widetilde{B}_{n0} \end{pmatrix}$$
(4.20)

por último, la matriz  ${\cal N}$  está definida como

$$N = diag\left[\left(f\widetilde{B}\right)\right] \tag{4.21}$$

donde f es la matriz de alimentación (fig.5.6) definida por

$$f = \left(\begin{array}{cccc} f_0 & f_1 & \dots & f_n \end{array}\right) \tag{4.22}$$

# 4.2.3. Captura electrónica con conversión interna y emisión gamma en decaimientos complejos

En el tratamiento del decaimiento anterior, no se tuvo en cuenta los fotones  $K_{\alpha}$  y  $K_{\beta}$  producidos en la captura electrónica y en la conversión interna[68]. En el proceso de captura electrónica, un núcleo captura un electrón y queda en algún estado excitado del núcleo residual, desde allí, decae a alguno de los estados de menor energía por la emisión de un fotón gamma o bien mediante conversión interna. La Figura 4.9 ilustra un decaimiento complejo posterior a la captura electrónica[68, 69]



Figura 4.9: Esquema de decaimiento complejo posterior a la captura electrónica.

Podemos considerar tres casos:

a) La probabilidad de detección de fotones  $K_{\alpha}$  y  $K_{\beta}$  producidos en la captura de electrones K y la posterior transición desde un estado n a otro i  $n \longrightarrow i$  va a estar dada por[68]

$$P_{\alpha ni} = x_{ni} \epsilon^p_{\alpha} P_{Ki} \omega_K g_{\alpha} \tag{4.23}$$

donde  $\epsilon^p_{\alpha}$  es la eficiencia de pico de un fotón  $K_{\alpha}$  mientras que  $P_{Ki}$  es la probabilidad de captura de un electrón de la capa K y la posterior transición al nivel excitado *i* después de la captura. El coeficiente  $\omega_K$  es la producción de fluorescencia de la capa  $K_{\alpha}$  y  $g_{\alpha}$  es la fracción de fluorescencia de los fotones  $k_{\alpha}$ . Similarmente, para los fotones  $K_{\beta}$  tendremos

$$P_{\beta ni} = x_{ni} \epsilon^p_\beta P_{Ki} \omega_K g_\beta \tag{4.24}$$

donde esta vez, los parámetros están referidos a los fotones de la capa  $K_{\beta}$ . Debe cumplirse[69]

$$g_{\alpha} + g_{\beta} = 1 \tag{4.25}$$

Por su parte, la probabilidad de que los fotones  $K_{\alpha}$  o  $K_{\beta}$  producidos en la captura electrónica no sean detectados es

$$q_{ni} = x_{ni} \left( 1 - \epsilon_{\alpha}^{T} P_{Ki} \omega_{K} g_{\alpha} - \epsilon_{\beta}^{T} P_{Ki} \omega_{K} g_{\beta} \right)$$
(4.26)

donde  $\epsilon_{\alpha}^{T}$  y  $\epsilon_{\beta}^{T}$  son las eficiencias totales de los fotones  $k_{\alpha}$  y  $K_{\beta}$  respectivamente.

b) Si en la transición  $i \longrightarrow j$  el decaimiento es por transición interna, se producirán fotones  $K_{\alpha}$  y  $K_{\beta}$  de transición interna cuya probabilidad de que sean detectados estará dada por[68]

$$p_{\alpha ij} = x_{ij} \epsilon^p_\alpha \frac{\alpha_{Kij}}{(1+\alpha_{ij})} \omega_K g_\alpha \tag{4.27}$$

donde  $\alpha_{Kij}$  es el coeficiente de conversión interna de la capa K,  $\alpha_{ij}$  es el coeficiente de conversión interna total y  $\epsilon^p_{\alpha}$  es la eficiencia de pico de la linea  $K_{\alpha}$ . Análogamente, para los fotones  $K_{\beta}[68]$ 

$$p_{\beta ij} = x_{ij} \epsilon^p_\beta \frac{\alpha_{Kij}}{(1 + \alpha_{ij})} \omega_K g_\beta \tag{4.28}$$

c) Si en la transición  $i \longrightarrow j$  posterior a la captura, se produce mediante la emisión de un fotón gamma la probabilidad de tal evento estará dada por

$$\gamma_{ij} = c_{ij} = x_{ij} \epsilon^p_{ij} \frac{1}{(1 + \alpha_{ij})}$$
(4.29)

la cual es la misma que la dada en la ecuación (4.6). Por su parte, la probabilidad de que ninguno de los fotones emitidos en la transición  $i \longrightarrow j$  sea detectado es[69]

$$q_{ij} = x_{ij} \left[ 1 - \frac{\epsilon_{ij}^T}{1 + \alpha_{ij}} - g_\alpha \omega_K \epsilon_\alpha^T \frac{\alpha_{Kij}}{1 + \alpha_{ij}} - g_\beta \omega_K \epsilon_\beta^T \frac{\alpha_{Kij}}{1 + \alpha_{ij}} \right]$$
(4.30)

donde  $\epsilon_{ij}^T$  es la eficiencia total de la transición  $i \longrightarrow j$  mientras que  $\epsilon_{\alpha}^T$  y  $\epsilon_{\beta}^T$  son las eficiencias totales de detección de fotones  $K_{\alpha}$  y  $K_{\beta}$ . Tomando en cuenta estas probabilidades es posible plantear las ecuaciones para cada una de las transiciones posibles [5]. En el año 2012 Naddered [69] y otros autores, obtuvieron una expresión más general para obtener las ecuaciones de conteo y las energías correspondientes para un decaimiento arbitrario, en forma matricial con elementos complejos.
#### 4.2.4. Método matricial para obtener las ecuaciones de conteo en un decaimiento de captura electrónica arbitrario

Para un decaimiento arbitrario, como el de la Figura 4.9 la matriz probabilidad total X nos proporciona la probabilidad de decaimiento desde un estado *i* a otro *j*. Por su parte, las componentes de la matriz  $X^2$  proveen la probabilidad de ir desde un estado a otro en dos pasos[68]. Asimismo, el número de términos de la componente  $X_{ij}^2$  provee el número de maneras distintas de pasar del estado *i* al *j* en dos pasos.

$$X^{2} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ x_{32}x_{21} & 0 & 0 & 0 \\ x_{42}x_{21} + x_{43}x_{31} & x_{43}x_{32} & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(4.31)

Así por ejemplo, la componente  $[X^2]_{31}$  da la probabilidad de ir de 3 a 1 en dos pasos

$$\left[X^2\right]_{31} = x_{32}x_{21} \tag{4.32}$$

Existe una sola manera de ir de 3 a 1 en dos pasos, y es ir de 3 a 2 y luego de 2 a 1. Similarmente, la componente  $[X^2]_{41}$  contiene la probabilidad y el número de maneras diferentes de ir de 4 a 1 en dos pasos.

$$\left[X^{2}\right]_{41} = x_{42}x_{21} + x_{43}x_{31} \tag{4.33}$$

El número de términos en la ecuación anterior, provee la cantidad de formas distintas de ir de 4 a 1 en este caso dos, y cada término expresa la probabilidad del evento correspondiente. Tomando en cuenta consideraciones como estas, Naddered[69] y otros autores en el año 2012 obtuvieron una expresión para un decaimiento arbitrario como el de la Figura 4.9. El método consiste en definir una matriz  $P^{\nu}$  donde  $\nu$  hace referencia al tipo de fotones emitidos en el decaimiento y a la probabilidad de que no interactúen es decir, según sean fotones  $K_{\alpha}$ ,  $K_{\beta}$  o gamma  $\gamma$ . La letra q se refiere al caso de que ninguno de los fotones sea absorbido. Es decir, podemos escribir

$$\nu = \{\alpha, \beta, \gamma, q\} \tag{4.34}$$

Para cada proceso, se define la matriz correspondiente[69]

$$P^{\nu} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & . & . & 0 \\ P_{10}^{\nu} e^{iE_{10}^{\nu}} & 0 & 0 & . & . & 0 \\ P_{20}^{\nu} e^{iE_{20}^{\nu}} & P_{21}^{\nu} e^{iE_{21}^{\nu}} & 0 & . & . & 0 \\ . & . & . & . & . & 0 \\ . & . & . & . & . & . \\ P_{n0}^{\nu} e^{iE_{n0}} & P_{n1}^{\nu} e^{iE_{n1}^{\nu}} & . & P_{nn-1}^{\nu} e^{iE_{nn-1}^{\nu}} & 0 \end{pmatrix}$$
(4.35)

cada elemento de la matriz contiene un factor escalar y un factor exponencial complejo. El factor escalar, expresa la probabilidad del proceso correspondiente, mientras que el argumento de los factores exponenciales contienen las energías de los fotones emitidos en la transición en cuestión. Podemos ver, que el cuadrado de la matriz  $P^{\nu}$  contiene las probabilidades de ir de un nivel a otro en dos pasos. Del mismo modo,  $[P^{\nu}]^3$  contiene las probabilidades de ir de un nivel a otro en dado a otro en tres pasos. Siguiendo así sucesivamente la n-ésima potencia de  $P^{\nu}$  contiene las probabilidades de ir de un estado a otro en n pasos. Las componentes de la matriz  $P^{\nu}$  van a estar dadas por

$$P_{ni}^{\nu} = \begin{cases} x_{ni}\epsilon_{\alpha}^{p}P_{Ki}\omega_{K}g_{\alpha} & para \quad \nu = \alpha \\ x_{ni}\epsilon_{\beta}^{p}P_{Ki}\omega_{K}g_{\beta} & para \quad \nu = \beta \\ x_{ni}\left(1 - \epsilon_{\alpha}^{T}P_{Ki}\omega_{K}g_{\alpha} - \epsilon_{\beta}^{T}P_{Ki}\omega_{K}g_{\beta}\right) & para \quad \nu = q \end{cases}$$

$$P_{ij}^{\nu} = \begin{cases} x_{ij}\epsilon_{\alpha}^{p} \frac{\alpha_{Kij}}{(1+\alpha_{ij})} \omega_{K} g_{\alpha} & para \quad \nu = \alpha \\ x_{ij}\epsilon_{\beta}^{p} \frac{\alpha_{Kij}}{(1+\alpha_{ij})} \omega_{K} g_{\beta} & para \quad \nu = \beta \\ x_{ij}\epsilon_{ij\gamma}^{p} \frac{1}{(1+\alpha_{ij})} & para \quad \nu = \gamma \\ x_{ij} \left[ 1 - \frac{\epsilon_{ij}^{T}}{(1+\alpha_{ij})} - g_{\alpha}\omega_{K}\epsilon_{\alpha}^{T} \frac{\alpha_{Kij}}{(1+\alpha_{ij})} - g_{\beta}\omega_{K}\epsilon_{\beta}^{T} \frac{\alpha_{Kij}}{(1+\alpha_{ij})} \right] \quad para \quad \nu = q \end{cases}$$

La probabilidad de que un fotón emitido en alguno de los procesos descriptos anteriormente tenga algún tipo de interacción en un solo paso, será la suma de los módulos de los coeficientes de las matrices de probabilidad de cada proceso[69]

$$S = P^{\alpha} + P^{\beta} + P^{\gamma} + P^q \tag{4.36}$$

por otro lado la matriz M definida como la suma de las potencias de S

$$M = \sum_{j=1}^{n} S^{j} = S + S^{2} + S^{3} + \dots + S^{n}$$
(4.37)

contiene los resultados para todas las trayectorias de decaimiento, n es el número de nivel del estado fundamental del pariente. En particular, el elemento de matriz  $M_{n0}$  provee las probabilidades de todas las trayectorias posibles desde el estado n al estado fundamental 0. Estas expresiones, nos proporcionan las ecuaciones que nos permiten expresar el número de cuentas del fotopico en términos de las eficiencias.

# 4.3. Determinación teórica de eficiencias de sistemas de espectrometría gamma

Un tema de investigación actual en espectrometría gamma es obtener expresiones que permitan obtener las eficiencias de pico y las eficiencias totales de sistemas con muestras grandes o volumétricas. Estos cálculos teóricos, sirven entre otras cosas para validar métodos y programas de simulación de transporte de radiación[70, 71][72] o estimar el valor correcto de dichas magnitudes. Los cálculos teóricos permiten estimar y chequear los valores de las eficiencias para un sistema simplificado dado.

En este contexto, son numerosos los trabajos que se han publicado para fuentes y detectores diversos. Los cálculos requieren expresiones complicadas que en la mayoría de los casos deben ser resueltas por métodos computacionales o numéricos[70]. Para una geometría genérica arbitraria consistente en una muestra volumétrica y un detector, existe abundante bibliografía con expresiones que dan la eficiencia total y de pico[70, 73]

Si  $d\Omega$  representa un ángulo sólido en la dirección angular definida por  $(\theta, \phi)$ y  $dN(\vec{r}, \Omega)$  representa el número de fotones que salen de un elemento de volumen dv situado en un punto  $\vec{r}$  interior a un cuerpo de volumen V que representa la fuente emisora de fotones y en dirección de  $\Omega$ . Si  $p(\vec{r}, \Omega)$  es la probabilidad de que un fotón emitido desde la posición  $\vec{r}$  y con dirección angular  $\Omega$  sea detectado. El número de fotones detectado  $dD(\vec{r}, \Omega)$  puede escribirse como[74][75]

$$dD(\vec{r},\Omega) = p(\vec{r},\Omega)dN(\vec{r},\Omega)$$
(4.38)

Dado que  $dN(\vec{r}, \Omega)$  representa el número de fotones emitidos desde la muestra suponiendo una distribución uniforme y emisiones isotrópicas el número de fotones emitidos será igual a

$$dN(\vec{r},\Omega) = N\frac{dv}{V}\frac{d\Omega}{4\pi}$$
(4.39)

Por tanto el número de fotones detectado será

$$dD(\vec{r},\Omega) = \frac{N}{4\pi V} p(\vec{r},\Omega) dv d\Omega \qquad (4.40)$$

Integrando esta expresión sobre todo el volumen de la fuente y sobre todas las direcciones, obtenemos una expresión para la eficiencia total o absoluta

$$\epsilon_T = \frac{1}{4\pi V} \int_V \int_{4\pi} p(\vec{r}, \Omega) \, dv d\Omega \tag{4.41}$$

### 4.4. Simulación Monte Carlo de espectros gamma de muestras de suelo y ambientales

En esta sección, hemos usado el código PENELOPE para simular espectros de muestras de suelo y similares[73]. Como fuentes policromáticas de fotones hemos usado muestras ambientales de suelo y materiales de construcción. Por un lado, se determinaron experimentalmente los espectros gamma radiactivos de un conjunto de muestras de suelo con un detector de GeHP. Por otro lado, se simularon las líneas intervinientes en los espectros individualmente.

Se tomaron en cuenta en la simulación[73], las principales componentes internas del detector como cobertura de aluminio, barra de enfriamiento, intersticios de vacío, el material del detector (Ge), y materiales dispersores como el aire circundante, envase de las muestras, muestras y dispositivos de blindaje respetando absolutamente las dimensiones de los cuerpos involucrados y su forma. Las Figuras 4.10 y 4.11 muestran el dispositivo experimental simulado; el cual, coincide con el utilizado para medir. Las figuras, fueron diseñadas con el visualizador gráfico del programa PENELOPE (2008)[39].

La simulación de espectros mediante el método Monte Carlo consiste en simular los principales procesos que tienen lugar desde que el fotón es emitido desde el núcleo. Cuanto más fiel sea esta simulación, los resultados serán más acordes a la realidad. Los efectos de absorción y dispersión que tienen lugar en la muestra y en los cuerpos que rodean al detector en el dispositivo de medición, pueden llegar a afectar de manera considerable la forma del espectro variando la proporcionalidad que existe entre las diferentes porciones del mismo y afectando, consecuentemente el ajuste entre el espectro medido y el simulado.

Este efecto, es más notable en detectores de baja resolución tales como los detectores de NaI(Tl) por ejemplo[73]. Por este motivo, se hizo fundamental

hincapié en los archivos que describen los materiales y la geometría del arreglo los cuales, fueron minuciosamente diseñados en forma y composición y verificados mediante el visualizador gráfico del programa. Los espectros de



**Figura** 4.10: Vista frontal del arreglo experimental utilizado y simulado a escala real. El mismo fue realizado con el visualizador gráfico del programa PENELOPE 2008.

muestras ambientales de suelo o materiales de construcción, se caracterizan porque contienen elementos radiactivos que persisten en la naturaleza desde la formación del planeta gracias a sus tiempos de vidas medias largas, del orden del tiempo transcurrido desde la formación del universo, y que supuestamente se encuentran en equilibrio radiactivo con sus descendientes[17]. Tal es el caso de las series radiactivas naturales del  $^{238}U$ ,  $^{232}Th$ ,  $^{235}U$  y además el  $^{40}K$ , este último, aún cuando no pertenece a ninguna cadena radiactiva, persiste en la naturaleza gracias a su tiempo de vida media del orden de los anteriores[17].

Dado que toda muestra de suelo, contiene en mayor o menor medida elementos de las series mencionadas[73], cuando se necesita medir una cierta cantidad de muestras es posible simular para una muestra particular, de un determinado tamaño y densidad tomada como patrón, las principales energías emitidas por estos elementos más, el conjunto de líneas emitidas por sus descendientes en equilibrio radiactivo. Esto, puede hacerse una sola vez y luego, usar estos espectros simulados para calcular la actividad y para ajustar el espectro de una muestra arbitraria.



**Figura** 4.11: Vista lateral del dispositivo de medición completo mostrando la barra de enfriamiento.

La densidad de la muestra tomada como patrón y del resto de las muestras, es la densidad macroscópica definida como el cociente entre la masa de la muestra y el volumen que ocupa, suponiendo que las moléculas del material en cuestión, están distribuidas al azar con densidad uniforme[39] sean éstas sólidas, líquidas o gaseosas. En el caso de sólidos supondremos que estos son materiales amorfos o poli-cristalinos. Es verdad que distintas muestras, aunque tengan la misma forma y tamaño, no tendrán por lo general la misma densidad. No obstante, esta dificultad puede ser obviada en principio, mezclando la muestra a medir, con una porción de material de baja actividad y mayor densidad para el caso en que ésta fuese menos densa que la muestra tomada como patrón y con un material sólido de baja densidad para el caso contrario. También es posible, hacer una curva con los valores de las eficiencias para distintas densidades.

Los espectros de los elementos pertenecientes a las series radiactivas antes mencionadas, salvo el  ${}^{40}K$ , contienen una cierta cantidad de líneas de energía en número superior a cincuenta con energías que van entre los 120 keV y 2614 keV y aparecen en algunos casos, superpuestas o fusionadas con otras de energía similar formando un solo pico[73]. Otras líneas en cambio, aparecen más solitarias o menos influenciadas y son las que se utilizan normalmente, para medir la actividad de un elemento.

En los métodos tradicionales[20], la actividad de un elemento se obtiene, calculando el área neta o número de cuentas del fotopico de la línea en cuestión, para lo cual, se toma como fondo una curva aproximadamente lineal subtendida entre los extremos del pico. Este método, puede conducir a errores importantes cuando el fotopico se encuentra ubicado en un valle o sobre el pico simple o doble escape de líneas de energía superior. Este efecto, es más importante en detectores de baja resolución.

Para resolver este problema, hemos implementado un método o algoritmo basado en el desarrollo realizado en el Capítulo 5. Anteriormente, otros autores[23][22][76] han simulado espectros gamma de detectores de GeHP y de NaI(Tl) de fuentes puntuales o monocromáticas. En esta tesis sin embargo, se presenta un método que sirve para simular y analizar un espectro complejo arbitrario aplicable a ambos tipos de detectores y en principio a cualquier detector de radiación gamma. Aunque el mismo se aplica a muestras de suelo y fuentes volumétricas de forma cilíndrica, es válido para cualquier tipo de fuentes sean sólidas, líquidas o gaseosas de tamaños y formas variadas y con distintas concentraciones y densidades.

Algunos programas como PENELOPE[39], simulan cadenas en equilibrio pero a veces es necesario analizar espectros que por distintas razones pueden no estar en equilibrio o en la proporción dada por sus intensidades relativas. Por ejemplo, la presencia inicial en la muestra de una cierta cantidad de un elemento que además es producido por el decaimiento de otros. Además, este método, requiere de la identificación previa de las líneas presentes en el espectro lo cual, puede inducir a errores dado que algunos picos se deben a picos de escape, picos suma etc.

Por el contrario, en el presente método se simula una línea por vez, y luego se reconstruye el espectro de modo tal que las líneas ocultas y los picos de escape son contemplados en la simulación, esto permite develar líneas ocultas. También, pequeñas variaciones en las posiciones de los picos, pueden ser corregidos sin tener que simular todas las líneas cada vez. Un espectro gamma, es básicamente la distribución de probabilidad de que un fotón individual emitido por la fuente interactúe con el detector entregando una determinada cantidad de energía en un dado intervalo y que luego, es convertida en un pulso de voltaje por un preamplificador y un amplificador.

Cada línea de emisión de energía determinada forma un espectro que consiste no solo en un pico, sino también en un contínuo compton y algunos picos secundarios. El espectro total de una muestra radiactiva policromática es por consiguiente, suponiendo despreciable efectos de simultaneidad, la suma o superposición de los espectros individuales de cada una de las líneas de energía emitidas por la fuente, esto será tratado más ampliamente en el Capítulo 5. Los efectos de simultaneidad por otro lado, no siempre son despreciables [45] y pueden llegar a influir de manera significativa, ya sea interfiriendo con aquellas líneas que se desea determinar, o por el contrario creando picos ficticios de energía. Un tratamiento sobre cómo cuantificar la influencia de tales picos fue realizado en este capítulo. En el Capítulo 7, por su parte, completamos el tratamiento y lo extendemos para corregir el efecto de la correlación angular. La Figura 4.12 ejemplifica la estructura de un archivo de entrada del programa penmain[39] para una muestra volumétrica de forma cilíndrica con las mismas dimensiones que las muestras de suelo medidas y emitiendo fotones de energía E = 911,2 keV de manera isotrópica. En este archivo, cada una de las sentencias especifica lo siguiente:

SKPAR: Tipo de partícula primaria en este caso, 2 especifica un fotón. SENERG: Energía de la partícula.

SPOSIT: Coordenadas del centro del cuerpo emisor o fuente.

SBOX: Dimensiones de la caja centrada en SPOSIT y que contiene el cuerpo fuente. Los números especifican las dimensiones de los lados de la caja a lo largo de los ejes X,Y y Z en cm. La posición, desde la cual la partícula es emitida se escoge por el método de rechazo.

SBODY: Número del cuerpo definido como fuente radiactiva.

SCONE: Abertura del cono en el cual los fotones son emitidos. Una fuente isotrópica emite en todas las direcciones con igual probabilidad.

MFNAME: Nombre del archivo de material de cada uno de los cuerpos presentes en el dispositivo simulado. Este archivo contiene una tabla donde se especifican parámetros tales como energías de ionización, densidad, etc, para cada cuerpo.

MSIMPA: Valores de los parámetros de simulación EABS(1:3),C1,C2,WCC y WCR para cada material. EABS(1), EABS(2), y EABS(3) son los parámetros de corte para absorción de energía. C1 y C2 son los parámetros de TITLE Response function of a GERMANIUM detector with a Pb shield

```
>>>>>> Source definition.
SKPAR 2
                                 [Primary particles: 1=electron, 2=photon, 3=positron]
   60Co gamma-ray spectrum (no sum effect).
SENERG 0.9112E6
SPOSIT 0 0 6.42
                                                        [Coordinates of the source]
SBOX 4.14.13.18
SBODY 8
                                                      [Conical beam; angles in deg]
SCONE 0 0 180
   MFNAME Cobre.mat
                                                       [Material file, up to 20 chars]
MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR]
MENAME Germanio mat
                                                       [Material file, up to 20 chars]
MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR]
MFNAME Aluminio.mat
                                                       [Material file, up to 20 chars]
MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR]
MFNAME Suelo-0.8B.mat
                                                       [Material file, up to 20 chars]
MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR]
MFNAME Lucite.mat
                                                       [Material file, up to 20 chars]
MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR]
MFNAME Grafito.mat
                                                       [Material file, up to 20 chars]
MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR]
MFNAME Aire.mat
                                                       [Material file, up to 20 chars]
MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR]
MFNAME Plomo.mat
                                                       [Material file, up to 20 chars]
MSIMPA 1.0e5 1.0e3 1.0e5 0.1 0.1 1e4 1e3 [EABS(1:3),C1,C2,WCC,WCR]
   >>>>>> Geometry definition file.
GEOMFN Detector-Ge.geo
                                                     [Geometry file, up to 20 chars]
   >>>>>> Emerging particles. Energy and angular distributions.
NBE 1e30.79475e6100
                                                    [Energy window and no. of bins]
NBANGL 45 18
                                           [No. of bins for the angles THETA and PHI]
   >>>>>> Energy deposition detectors (up to 25).
ENDETC 1e3 0.9112e6 2571
                                                [Energy window and number of bins]
EDSPC Resu-0.8-0911.dat
                                                               [archivo de salida]
EDBODY 3
                                                [Active body; one line for each body]
   >>>>>> Job properties
RESUME dump1.dmp
                                              [Resume from this dump file, 20 chars]
DUMPTO dump2.dmp
                                                  [Generate this dump file, 20 chars]
DUMPP 6000
                                                           [Dumping period, in sec]
RSEED 12345,34778
                                            [Seeds of the random-number generator]
NSIMSH 7e6
                                              [Desired number of simulated showers]
TIME 3.000e5
                                                    [Allotted simulation time, in sec]
END
                                                    [Ends the reading of input data]
```

Figura 4.12: Archivo de entrada del programa de simulación penmain.

dispersión elástica. WCC son los parámetros de corte de energía para pérdida por colisiones inelásticas y WCR son los parámetros de corte de energía por pérdidas por emisión de bremsstrahlung

GEOMFN: Nombre del archivo de geometría. Especifica la forma y el tamaño de cada cuerpo este puede ser visualizado mediante el visualizador gráfico GVIEW2D

NBE: Límites de los intervalos de energía donde las distribuciones de energía son computados y el número de intervalos de energía.

NBANGL: Distribución angular de partículas emergentes (no es de importancia aquí)

ENDETC: Intervalo de energía y el número de canales en los cuales serán distribuidas las energía entregada por las partículas al detector.

EDSPC: Nombre del archivo de salida con el espectro resultante de la simulación.

EDBODY: Cuerpo activo tomado como detector o cuerpo donde la distribución de energía es entregada. Una línea por cada cuerpo activo o detector en el caso que hubiera más de uno.

RESUME: El program lee el programa dump1.dpm y resume la simulación desde donde este fué dejado.

DUMPTO: Genera el archivo dump2.dmp después de completar la simulación. Esto permite retomar o continuar la simulación a partir de este punto para mejorar la estadística.

DUMPP: Intervalo de tiempo para el cual, los resultados de la simulación son grabados en los archivos de salida.

RSEED: Semillas del generador de números.

NSIMSH: Número de partículas simuladas.

TIME: Tiempo de simulación en segundos.

END: Fin del archivo de entrada.

## Capítulo 5

# Tratamiento de datos. Fundamentación del método de cálculo

En este capítulo, se deduce y describe un método de ajuste entre el espectro simulado y el espectro medido que utiliza un solo parámetro para cada serie radiactiva en equilibrio presente en la muestra. Se describe cómo se convolucionan los espectros simulados y se obtiene una expresión para el espectro simulado total, que contiene la contribución del fondo de ambiente y la contribución de pulsos espurios. El método, permite hacer una automatización del ajuste una vez que se dispone de los espectros simulados para la muestra particular bajo estudio.

### 5.1. Expresiones analíticas obtenidas a partir de espectros gamma simulados de cadenas en equilibrio radiactivo y fuentes monocromáticas

Para simplificar el análisis, consideremos el espectro discreto de una fuente emitiendo partículas de tan solo dos energías  $E_1$  y  $E_2$ . Considerando despreciables efectos de simultaneidad y un conteo suficientemente bajo, podemos suponer que el espectro total será igual a la suma componente a componente, de los espectros de cada energía separadamente

$$S(m) = S_1(m) + S_2(m)$$
(5.1)

dónde S(m) es el espectro total (medido) expresado como una función de la variable discreta m (número de canal).  $S_1(m)$  y  $S_2(m)$  son los espectros de cada fuente separadamente (que obtendremos mediante simulación)[73]. Por las ecuaciones (2.10) y (2.12), podemos expresar el espectro de cada fuente como

$$S_1(m) = \alpha_1 \sum_{n=1}^N S_n^{(1)} R(m-n)$$
(5.2)

$$S_2(m) = \alpha_2 \sum_{n'=1}^{N} S_{n'}^{(2)} R(m-n')$$
(5.3)

donde las eficiencias  $\epsilon_j^T$  han sido reemplazadas por las componentes de los espectros simulados  $S_n^{(1)}$  y  $S_n^{(2)}$  de las líneas de energía  $E_1$  y  $E_2$  respectivamente. Los espectros simulados  $S_1$  y  $S_2$  pueden ser considerados como un vector cuyas componentes son  $S_n^{(1)}$  y  $S_{n'}^{(2)}$ . De igual modo,  $N_0$  ha sido reemplazado por los parámetros de ajuste  $\alpha_1$  y  $\alpha_2$  que son las magnitudes a conocer.

Los números de canal i, j han sido reemplazados por m, n y n' respectivamente. En las sumas anteriores, se tomaron los números de canal n y n' como diferentes para hacer notar que se trata de dos sumas distintas. Los parámetros de ajuste  $\alpha_1 y \alpha_2$  deben ser tales que  $S_1 y S_2$  sumados ajusten al espectro medido lo mejor posible[73]. Si en vez de tomar en las ecuaciones anteriores los espectros simulados  $S_n^{(1)} y S_{n'}^{(2)}$  tal como los entrega el ordenador, tomamos sus espectros normalizados

podemos reescribir las ecuaciones (5.2) y (5.3) como

$$S_1(m) = a_1 \sum_{i=1}^{N} s_n^{(1)} R(m-n)$$
(5.5)

$$S_2(m) = a_2 \sum_{i=1}^{N} s_{n'}^{(2)} R(m - n')$$
(5.6)

donde hemos reemplazado

$$a_1 = \alpha_1 \sum_{k=1}^{N} S_k^{(1)} \quad y \quad a_2 = \alpha_2 \sum_{k=1}^{N} S_k^{(2)}$$
 (5.7)

Si las partículas de energía  $E_1$  y  $E_2$  pertenecen a un mismo elemento radiactivo o a dos isótopos diferentes en equilibrio radiactivo, la actividad obtenida para el primer elemento debe arrojar el mismo resultado que la actividad medida para el otro elemento[77]. Dicho de otro modo, sus actividades deben ser iguales. La actividad media  $\overline{A_1}$  para las partículas de energía  $E_1$  o primer elemento radiactivo tomando el área total del espectro puede escribirse

$$\overline{A}_1 = \frac{AreaTotal_1}{\epsilon_1^T} \frac{1}{T} \frac{100}{I_1}$$
(5.8)

donde

$$AreaTotal_1 = \sum_{m=1}^{N} S_1(m)$$
(5.9)

es el área de todo el espectro simulado de la línea de energía  ${\cal E}_1$ y donde

$$\epsilon_1^T = \sum_{j=1}^N S_j^{(1)} \tag{5.10}$$

es la eficiencia total absoluta correspondiente a la misma línea. Análogamente para las partículas de energía  $E_2$  la actividad es

$$\overline{A}_2 = \frac{AreaTotal_2}{\epsilon_2^T} \frac{1}{T} \frac{100}{I_2}$$
(5.11)

donde

$$AreaTotal_2 = \sum_{m=1}^{N} S_2(m) \tag{5.12}$$

y donde

$$\epsilon_2^T = \sum_{j=1}^N S_j^{(2)} \tag{5.13}$$

es la eficiencia total de la línea de energía  $E_2$ . Teniendo en cuenta la ecuación

(5.5) podemos escribir[73]

$$AreaTotal_{1} = \sum_{m=1}^{N} S_{1}(m) = \sum_{m=1}^{N} a_{1} \sum_{n=1}^{N} s_{n}^{(1)} R(m-n) = a_{1} \sum_{n=1}^{N} s_{n}^{(1)} \sum_{m=1}^{N} R(m-n)$$
(5.14)

pero por las ecuaciones (5.4) y (2.11)

$$\sum_{n=1}^{N} s_n^{(1)} = 1 \tag{5.15}$$

у

$$\sum_{m=1}^{N} R(m-n) = 1$$
 (5.16)

de donde obtenemos que

$$AreaTotal_1 = a_1 \tag{5.17}$$

con lo cual, podemos escribir la ecuación (5.8) como

$$\overline{A}_1 = \frac{a_1}{\epsilon_1^T} \frac{1}{T} \frac{100}{I_1}$$
(5.18)

Aplicando el mismo razonamiento anterior a las partículas de energía  $E_2$ , obtenemos para la actividad media  $A_2$ 

$$\overline{A}_2 = \frac{a_2}{\epsilon_2^T} \frac{1}{T} \frac{100}{I_2}$$
(5.19)

imponiendo la condición de que las actividades  $\overline{A}_1$  y  $\overline{A}_2$  deben ser iguales, se obtiene la siguiente relación entre los coeficientes de ajuste de las dos líneas

$$a_2 = \frac{\epsilon_2^T I_2}{\epsilon_1^T I_1} a_1 \tag{5.20}$$

Podemos reescribir la ecuación (5.1) como

Expresiones analíticas obtenidas a partir de los espectros gamma simulados 69

$$S(m) = S_1(m) + S_2(m) = a_1 \sum_{n=1}^N s_n^{(1)} R(m-n) + \frac{\epsilon_2^T}{\epsilon_1^T} \frac{I_2}{I_1} a_1 \sum_{n'=1}^N s_{n'}^{(2)} R(m-n')$$
(5.21)

La cual, puede ser escrita como

$$S(m) = a_1 \left[ \sum_{n=1}^N s_n^{(1)} R(m-n) + \frac{\epsilon_2^T}{\epsilon_1^T} \frac{I_2}{I_1} \sum_{n'=1}^N s_{n'}^{(2)} R(m-n') \right]$$
(5.22)

si tomamos n = n' podemos escribir

$$S(m) = a_1 \sum_{j=1}^{2} \sum_{n=1}^{N} \frac{\epsilon_j^T}{\epsilon_1^T} \frac{I_j}{I_1} s_n^{(j)} R(m-n)$$
(5.23)

Esta ecuación, nos muestra que si tenemos un espectro formado por dos líneas en equilibrio radiactivo podemos ajustarlas al espectro medido con un solo parámetro  $(a_1)$ . Si en vez de tener dos energías, tuviésemos un número k de líneas de un mismo elemento o de distintos elementos en equilibrio radiactivo, como ocurre por ejemplo en las cadenas radiactivas naturales, podemos tomar una línea dada como referencia y escribir

$$S(m) = a_1 \sum_{j=1}^{k} \sum_{n=1}^{N} \frac{\epsilon_j^T}{\epsilon_1^T} \frac{I_j}{I_1} s_n^{(j)} R(m-n) \quad k = \text{número de líneas}$$
(5.24)

En este caso, hemos tomado como referencia la línea de energía  $E_1$ . Si hubiese más de una cadena radiactiva presente en el espectro, necesitaremos un parámetro independiente para cada serie. Si el número de series radiactivas presentes es r, habrá r parámetros independientes  $a_i$  y el espectro puede escribirse como

$$S(m) = \sum_{i=1}^{r} a_i \sum_{j=1}^{k} \sum_{n=1}^{N} \frac{\epsilon_{ji}^T}{\epsilon_{1i}^T} \frac{I_{ji}}{I_{1i}} s_{ni}^{(j)} R(m-n)$$
(5.25)

donde el índice *i* hace referencia a la serie radiactiva y *j* hace referencia a la energía. En el caso de que la muestra contenga además de los elementos ya mencionados, otros no pertenecientes a ninguna cadena radiactiva como por ejemplo  $^{40}K$ , estos deben ser ajustados de manera independiente y los llamaremos elementos independientes. En este caso, la expresión para el espectro total puede ser escrita como la suma de dos términos, uno correspondiente a los elementos pertenecientes a series radiactivas y otro, correspondiente a los elementos independientes.

$$S(m) = \sum_{i=1}^{r} a_i \sum_{j=1}^{k} \sum_{n=1}^{N} \frac{\epsilon_{ji}^T}{\epsilon_{1i}^T} \frac{I_{ji}}{I_{1i}} s_{ni}^{(j)} R(m-n) + \sum_{\substack{k=elementos\\independientes}} b_k \sum_{n=1}^{N} S_n^{(k)} R(m-n)$$
(5.26)

 $S_n^{(k)}$  en esta ecuación, es el espectro simulado sin normalizar de cada uno de los elementos independientes o extraños que aparecen en el espectro y  $b_k$  son los respectivos parámetros de ajuste. En este caso, no va a existir relación alguna entre los parámetros  $b_k$ . A este espectro, para poder ajustarlo adecuadamente al espectro medido y en el caso particular de espectros gamma, debemos sumarle el fondo de radiación del ambiente que se filtra a través del blindaje y que depende del tipo y espesor del blindaje.

Este fondo, puede ser obtenido midiendo durante un tiempo igual al tiempo de medición utilizado para medir la muestra pero sin la muestra. Al espectro total además, debemos sumarle un pequeño fondo de tipo exponencial debido a pulsos espurios generados en la electrónica asociada al detector y otros dispositivos acoplados tales como tubos fotomultiplicadores (PM), pre-amplificadores, etc. Este fondo espurio, se manifiesta al ajustar el espectro simulado al medido aplicando las consideraciones anteriores.

Tanto el fondo espurio, como el fondo del ambiente no son contemplados en la simulación. El fondo espurio, no es posible de medir como no sea aplicando un método basado en simulación como el aquí descripto. Depende de la energía e intensidad de las fuentes presentes y debe ser ajustado de modo tal, que el espectro calculado coincida con el medido en toda su extensión. Es prácticamente despreciable a altas energías pero puede ser de importancia a energías del orden de 180 keV o menores. Tomando esto en cuenta, la expresión completa del espectro calculado puede escribirse como

$$S(m) = \sum_{i=1}^{r} a_{i} \sum_{j=1}^{k} \sum_{n=1}^{N} \frac{\epsilon_{ji}^{T}}{\epsilon_{1i}^{T}} \frac{I_{ji}}{I_{1i}} s_{ni}^{(j)} R(m-n) + \cdots$$
(5.27)
$$\sum_{k} \sum_{k=1}^{N} S_{n}^{(k)} R(m-n) + Fondo(m) + Fdo_{espurio}(m)$$

$$k=elementos$$
  $n=1$   $n$ 

+

el primer término de esta ecuación, toma en cuenta el espectro debido a líneas pertenecientes a elementos en equilibrio radiactivo. El segundo término en tanto, toma en cuenta los elementos independientes. El tercer término, es el fondo de radiación ambiente que se filtra a través del blindaje, mientras que el cuarto término es debido a los pulsos espurios generados en la electrónica. Si tal como se comprueba experimentalmente, escribimos la expresión para el fondo espurio aproximadamente como una exponencial decreciente

$$Fdo_{espurio}(m) = \alpha e^{-\beta m} \tag{5.28}$$

dónde  $\alpha$  y  $\beta$  son dos parámetros adicionales que deben ser ajustados para que el espectro calculado S(m) se aproxime al espectro medido en toda su extensión, especialmente, en la parte menos energética del espectro que es donde este efecto es más notable como ya lo dijimos. Con estas consideraciones, la expresión para el espectro calculado total puede escribirse

$$S(m) = \sum_{i=1}^{r} a_i \sum_{j=1}^{k} \sum_{n=1}^{N} \frac{\epsilon_{ji}^T I_{ji}}{\epsilon_{1i}^T I_{1i}} S_{ni}^{(j)} R(m-n) + \cdots$$

$$+ \sum_{\substack{k=elementos\\independientes}} b_k \sum_{n=1}^{N} S_n^{(k)} R(m-n) + Fondo(m) + \alpha e^{-\beta m}$$
(5.29)

La función resolución de energía, puede tomarse como una gaussiana (ver sección 4.3)[22]

$$R(E_i - E_j) = \frac{1}{2\pi\sigma(E_j)} e^{-\frac{(E_i - E_j)^2}{2\sigma(E_j)^2}}$$
(5.30)

o bien, en términos del número de canal  $m \ge n$ 

$$R(m-n) = \frac{1}{2\pi\sigma(n)}e^{-\frac{(m-n)^2}{2\sigma(n)^2}}$$
(5.31)

Reemplazando en la ecuación (5.29) obtenemos

$$S(m) = \sum_{i=1}^{r} a_i \sum_{j=1}^{k} \sum_{n=1}^{N} \frac{\epsilon_{ji}^T}{\epsilon_{1i}^T} \frac{I_{ji}}{I_{1i}} s_{ni}^{(j)} \frac{1}{2\pi\sigma(n)} e^{-\frac{(m-n)^2}{2\sigma(n)^2}} + \cdots$$

(5.32)

+ 
$$\sum_{\substack{k=elementos\\independientes}} b_k \sum_{n=1}^N S_n^{(k)} \frac{1}{2\pi\sigma(n)} e^{-\frac{(m-n)^2}{2\sigma(n)^2}} + Fondo(m) + \alpha e^{-\beta m}$$

Los valores de la resolución  $\sigma(n)$  en función del número de canal o de la energía dependen del tipo y características del detector. Puede ser obtenida de manera experimental, midiendo directamente esta magnitud en un espectro policromático a distintas energías.

También puede ser obtenida, midiéndola en espectros de fuentes monocromáticas de distinta energía. Con estos valores, es posible encontrar la relación funcional  $\sigma = \sigma(n)$  o  $\sigma = \sigma(E)$ . En nuestro caso particular, hemos tomado el espectro de una muestra de suelo y hemos medido  $\sigma$  a distintas energías en el rango entre 180 keV y 2614 keV. Hemos considerado los picos mejor definidos y las líneas más puras e intensas presentes en el espectro. Para un detector de NaI(Tl) la relación funcional con la energía es del tipo[22]

$$\sigma(E) = aE^b \tag{5.33}$$

para el detector de GeHP de nuestra experiencia, se encuentra que la relación es aproximadamente lineal en el rango de energías mayores a 100 keV.

Si en las ecuaciones (5.8) y (5.11) en vez de tomar la suma sobre todo el espectro hubiésemos tomado la suma sobre un determinado intervalo cualquiera del espectro, por ejemplo el fotopico, obtendríamos una expresión equivalente para la actividad media solo que en este caso, debemos reemplazar en la ecuación el área total por el área del fotopico o por el área de la porción del espectro que se considere y la eficiencia total, por la eficiencia de pico o por la eficiencia de la porción del espectro que se considere.

Normalmente, para determinar la actividad de un elemento radiactivo, se considera el área o número de cuentas del fotopico por ser ésta la porción del espectro que por lo general, sobresale del espectro total. En este caso, la expresión para la actividad media puede escribirse como[73]

$$\overline{a} = \frac{AreaFotopico}{\epsilon^P} \frac{1}{I} \frac{100}{T}$$
(5.34)

donde AreaFotopico es el área o número de cuentas netas del fotopico,  $\epsilon^P$  es la eficiencia de pico, T es el tiempo de medición e I es la intensidad de la línea que se considere. El área del fotopico puede escribirse como

Método de ajuste de espectros gamma

$$AreaFotopico = \sum_{m=FotoPico} \Gamma_j^i(m)$$
(5.35)

donde  $\Gamma^i_j(m)$  es el espectro convolucionado de la línea de energíaj perteneciente a la seriei

$$\Gamma_{j}^{i}(m) = a_{i} \sum_{n=1}^{N} \frac{\epsilon_{ji}^{T}}{\epsilon_{1i}^{T}} \frac{I_{ji}}{I_{1i}} s_{ni}^{(j)} R(m-n)$$
(5.36)

### 5.2. Método de ajuste de espectros gamma complejos de cadenas radiactivas en equilibrio y fuentes monocromáticas

La ecuación (5.29) contiene una cantidad de parámetros que es necesario reducir para disminuir el tiempo de cálculo y hacer posible el ajuste. Para esto, hemos implementado el siguiente método consistente en un ajuste por partes. Comenzamos ajustando el fotopico de mayor energía presente en el espectro y que por lo tanto, no está afectado por el fondo compton de líneas de energía superior, es decir, suponemos que es una línea "limpia". Si este pico, pertenece a una serie radiactiva su ajuste nos proporcionará el parámetro  $a_1$  en la ecuación (5.23), (5.27) o (5.29) y lo usamos para toda la serie respectiva[77].

Observemos que al ajustar el fotopico, ajustamos también el resto del espectro con el mismo parámetro es decir, obtenemos todo el espectro correspondiente a esa energía. Si el primer pico no pertenece a ninguna cadena radiactiva, lo ajustamos de modo independiente y luego continuamos hacia las líneas de menor energía hasta llegar al siguiente pico no ajustado.

En este punto, repetimos el proceso si el pico encontrado pertenece a otra cadena nuevamente lo ajustamos como al primer pico sobre el fondo de todas la líneas anteriores y obtenemos el segundo parámetro  $a_2$  que usamos para toda esta serie. Repetimos el proceso hasta cubrir todo el espectro. A partir de la primera línea, comenzamos sumándole el fondo del ambiente que hemos medido previamente en ausencia de la muestra. Una vez que hemos ajustado todo el espectro con el fondo del ambiente, le agregamos el fondo espurio de

modo que el espectro simulado total coincida con el espectro medido. A veces, puede ser conveniente ajustar el espectro tomando en cuenta el fondo espurio desde un principio el cual, en el caso de un detector de alta resolución puede ser considerado aproximadamente constante entre los bordes de un fotopico.

Esto se comprende, tomando en cuenta que el fondo espurio es de tipo exponencial[77] y de variación suave, motivo por el cual en un intervalo pequeño puede ser considerado un segmento de recta o constante. El valor constante, será el valor del fondo espurio justo antes del siguiente pico no ajustado. Luego podemos obtener el fondo espurio total, tomando en cuenta estos valores en diferentes porciones del espectro.

Este proceso, permite detectar líneas extrañas presentes en el espectro, dado que si un pico es la suma de dos o más, el ajuste correspondiente no coincidirá, porque el área de ese pico debe estar en relación con la de los otros picos del mismo elemento u otros elementos en equilibrio radiactivo.

Para facilitar el ajuste, los parámetros  $a_i$  pueden escribirse como el producto de dos factores un factor de ajuste "grueso", y otro de ajuste "fino". Con el factor de ajuste grueso, se hace una primera aproximación al espectro medido y se toma este valor para el ajuste de muestras de actividad similar. El factor de ajuste fino, sirve para cada muestra en particular.

A veces, suele ocurrir que el pico de mayor energía es pequeño y por consiguiente está afectado de mayor error. En este caso, es posible hacer un ajuste provisorio con este pico y luego, hacer un ajuste más exacto tomando con mayor peso líneas de menor energía pero más intensas. El procedimiento puede resumirse mediante el siguiente algoritmo[73]:

- a) Leer el espectro medido
- b) Leer el espectro de fondo
- c) Identificar la línea de mayor energía en el espectro. Verificar que dicha línea no esté compuesta de dos o más, de energía similar.
- d) Leer el espectro simulado en N canales correspondiente a la energía  $E_1$  del primer pico (c) en forma de vector:

$$S_{n}^{(1)} = \begin{pmatrix} S_{1}^{(1)} \\ S_{2}^{(1)} \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ S_{N}^{(1)} \end{pmatrix}$$
(5.37)

e) Normalizarlo de la siguiente manera:

$$s_n^{(1)}(m) = \frac{S_n^{(1)}}{\sum_{k=1}^N S_k^{(1)}}$$
(5.38)

f) El espectro normalizado se convoluciona con una gaussiana de area unidad con  $\sigma = \sigma(n)$  obtenida experimentalmente, se multiplica por la eficiencia total y la intensidad de la línea de mayor energía. Se divide por el producto entre la eficiencia e intensidad correspondientes a la línea de referencia perteneciente a la serie  $(I_{01})$ , y se multiplica por un factor de ajuste grueso  $A_1$  y otro de ajuste fino  $a_1$ . Se suma para todos los canales y se le suma el fondo de ambiente.

$$S_1(m) = a_1 A_1 \frac{\epsilon_1^T}{\epsilon_{01}^T} \frac{I_1}{I_{01}} \sum_{j=1}^N s_n^{(1)} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma(n)}} e^{-\frac{(m-n)^2}{2\sigma(n)^2}} + Fondo(m) \quad (5.39)$$

De este modo, obtenemos el espectro correspondiente a la primera línea de energía más el fondo de ambiente.

- g) Se optimiza el valor de  $a_1$  de modo tal que el espectro  $S_1(m)$  ajuste al espectro medido en el primer pico lo mejor posible. Se chequea el ajuste mediante cuadrados mínimos.
- h) Se continúa con la línea siguiente  $(2^{a})$  en el orden de las energías decrecientes. Se repiten los pasos a partir de d). En el punto f), pueden ocurrir tres casos:

i) Que la línea pertenezca a la misma serie radiactiva que la primera, en ese caso, se multiplica por el mismo factor  $a_1A_1$  de la primera y por la intensidad y eficiencia total correspondiente a la segunda línea y se suma al espectro anterior. Es decir

$$S_2(m) = a_1 A_1 \frac{\epsilon_2^T}{\epsilon_{02}^T} \frac{I_2}{I_{01}} \sum_{j=1}^N s_n^{(2)} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma(n)}} e^{-\frac{(m-n)^2}{2\sigma(n)^2}} + S_1(m)$$
(5.40)

*ii*) Que la línea pertenezca a otra serie radiactiva. En ese caso, se ajusta mediante otros parámetros de ajuste fino y grueso  $b_1B_1$  correspondientes a esa serie

$$S_2(m) = b_1 B_1 \frac{\epsilon_2^T}{\epsilon_{02}^T} \frac{I_2}{I_{02}} \sum_{j=1}^N s_n^{(2)} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma(n)}} e^{-\frac{(m-n)^2}{2\sigma(n)^2}} + S_1(m)$$
(5.41)

donde  $\epsilon_{02}^T$  y  $I_{02}$  son la eficiencia total y la intensidad de la línea tomada como referencia para la serie radiactiva 2.

*iii*) Que la línea no pertenezca a ninguna serie radiactiva, en ese caso se ajusta de manera independiente eligiendo un parámetro  $c_1$  diferente de los anteriores para cada línea y sin necesidad de referenciarlo.

$$S_2(m) = c_1 \cdot \sum_{j=1}^N s_n^{(2)} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma(n)}} e^{-\frac{(m-n)^2}{2\sigma(n)^2}} + S_1(m)$$
(5.42)

- i) Se continúa con la siguiente línea se repiten nuevamente los pasos a partir de d) si la línea pertenece a alguna de las series anteriores, se multiplica por el mismo factor usado para las precedentes. Caso contrario, se ajusta mediante otro factor independiente y se suma a las anteriores.
- *j*) Se repite el proceso hasta llegar a la línea que se desea calcular, o bien hasta la última línea presente si se desea ajustar todo el espectro.

#### 5.3. Convolución con una gaussiana

La justificación de convoluciónar el espectro simulado con una gaussiana, radica en el hecho de suponer que la dispersión en la magnitud del pulso de corriente producido en el detector y que llega finalmente al multicanal, responderá a una distribución de este tipo. Es decir, dos partículas diferentes que eventualmente entreguen idéntica cantidad de energía al detector no producirán por lo general, el mismo pulso sino que éste se distribuirá en torno de un valor medio[78][79].

En este proceso, intervienen no solamente aquellos eventos ocurridos en el detector sino también, en otros dispositivos tales como tubos fotomultiplicadores (PM) o en la electrónica asociada. Por ejemplo, dos fotones de igual energía incidiendo sobre el fotocátodo de un tubo PM seguramente no producirán la misma cantidad de electrones en las etapas de multiplicación posteriores a la eyección del electrón desde la superficie del fotocátodo y por ende, el pulso resultante no tiene porqué tener exactamente la misma amplitud para los dos fotones. Algo similar, se espera que ocurra con los procesos de amplificación del pulso que tienen lugar en la electrónica asociada al dispositivo. Estos aspectos, no son tomados en cuenta en la simulación motivo por el cual, es necesario convolucionar el espectro para considerarlos.



**Figura** 5.1: Espectro simulado de una fuente monocromática medido con detector grande que rodea totalmente la fuente. El espectro simulado (azul) es reemplazado por una gaussiana de igual área, obteniendo así el espectro convolucionado de la línea.

La función resolución, puede ser obtenida de manera experimental midiendo en un espectro dado, el parámetro  $\sigma$  y debe ser tal, que conduzca a un buen ajuste de los picos en las diferentes porciones del espectro total. Para ejemplificar este aspecto, podemos considerar el caso de un detector de gran tamaño que rodee totalmente una fuente monocromática. Si el espesor del detector es suficientemente grande, podemos suponer, que todos los fotones emitidos desde la fuente serán absorbidos en el detector y por consiguiente, entregarán toda su energía al mismo.

Dado que las partículas secundarias y fotones secundarios producidos por efecto compton, produción de pares, bremsstrahlung, etc. tendrán muy poca probabilidad de escapar; el espectro si se trata de fotones de alta energía, consistirá solamente en un pico con forma de gaussiana ya que el fondo compton será nulo. El espectro simulado en este caso, consistirá en un solo valor correspondiente a la energía de las partículas.

La Figura 5.1 ilustra lo antedicho. Análogamente, si tenemos un espectro simulado compuesto por dos líneas de energía el espectro consistirá en dos gaussianas que pueden estar ligeramente superpuestas dependiendo de la separación de las líneas de energía, como se muestra en la Figura 5.2



**Figura** 5.2: Espectro binario simulado con energías separadas ligeramente, para el caso de un detector grande. Las líneas azules representan los espectros simulados, la línea verde, representa el espectro simulado y convolucionado total.

9

# Capítulo 6 Desarrollo experimental

En este capítulo, hacemos una descripción del instrumental utilizado mostrando el arreglo experimental y los principales parámetros de medición y describimos la preparación de las muestras utilizadas.

#### 6.1. Descripción del instrumental

La determinación de los espectros gamma de las diversas muestras medidas, fueron realizados utilizando un detector de fotones de estado sólido de GeHP(High Purity Germanium). El detector, es de tipo cilíndrico y de configuración vertical marca ORTEC modelo GEM25-70 con una configuración del criostato CFG-SV-70 y un termo ORTEC modelo DWR-30 de 30 litros de capacidad. Un preamplificador modelo A257P N° de serie 11110218 que está montado inmediatamente debajo del detector.

| Detector     | voltaje      | 2300 Volts                           |
|--------------|--------------|--------------------------------------|
|              | resolución   | 1,85  keV a 1,33  MeV                |
|              |              | $0,\!82~{\rm keV}$ a $122~{\rm keV}$ |
| Amplificador | shaping time | $6 \ \mu s$                          |
|              | ganancia     | coarse $50$ fine $0,60$              |
|              | pulso        | positivo $(+)$                       |

Tabla 6.1: Parámetros de operación del instrumental

El voltaje de operación es de 2300 Volts positivo y la resolución (FWHM) para la línea de 1,33 MeV del  ${}^{60}Co$  es 1,85 keV (shaping time 6  $\mu$  s), mientras que para la línea de 122 keV del  ${}^{57}Co$  es de 0,82 keV. A la cadena de espectrometría gamma la completan, un amplificador ORTEC 572 A con

rango de ganancia desde  $\times 1$  a  $\times 1500$ , una fuente de alta tensión *EBG* ORTEC 659 con rango de 0-5 kV o 0-500 V. La Tabla 6.1 contiene los principales parámetros de operación del instrumental. También forman parte del instrumental, un analizador multicanal ORTEC modelo 926 el cual es operado a través del software ORTEC MAESTRO 32 MCA Emulator. La Figura 6.1 muestra el dispositivo electrónico completo. El detector, además está rodeado por un blindaje de Pb como se ilustra en la Figuras 4.10 y 4.11.



**Figura** 6.1: Esquema del arreglo experimental utilizado mostrando el equipamiento electrónico y la disposición de la muestra.

El Germanio es un material semiconductor que a bajas temperaturas (-200 °C) se comporta como un aislante. Ante la aplicación de un voltaje, (en nuestro caso 2300 V) se crea un campo eléctrico dentro del detector, que por la interacción de un fotón, puede ionizar el material y las cargas producidas, pueden generar a su vez ionización adicional. Las cargas de ionización pueden ser elevadas a la banda de conducción y ser aceleradas ante la acción del campo eléctrico generando una cascada de cargas dentro del detector. El resultado final, es una cierta cantidad de cargas colectadas por el electrodo positivo que son convertidas en un pulso de potencial por el pre-amplificador ubicado muy próximo al detector. El pulso de corriente, es transmitido a

través de un cable de tres metros de longitud aproximadamente hasta el amplificador el cual, convierte el pulso recibido en un pulso de potencial de alrededor de entre 0 y 10 Volts. Dicho pulso es proporcional a la energía entregada por el fotón al detector. El pulso de potencial generado en el amplificador, es luego, clasificado de acuerdo a su energía por el multicanal el cual lo convierte en una cuenta ubicada de acuerdo a su energía entre el canal 0 y el máximo número de canales (N) elegido en el multicanal. El resultado de una cierta cantidad de interacciones fotónicas es convertida por el multicanal en un espectro el cual es visualizado en la pantalla de un ordenador. El número de canales utilizado para medir puede ser elegido como una potencia entera de 2 es decir 2, 4, 8,...,1024, 2048, 4096 y 8192 como máximo en el caso de nuestro multicanal. Se elegió este último número para que los fotopicos puedan ser mejor ajustados por gaussianas. Las muestras, fueron ubicadas justo encima del detector como se muestra en la Figuras 6.1, 4.10 y 4.11. En algunas ocasiones, las muestras pueden ser ubicadas de otras maneras o a cierta distancia del detector, dependiendo de las condiciones experimentales. Esto puede hacer disminuir la eficiencia de detección por este motivo, cuando el nivel de la actividad es muy bajo se trata de ubicar las muestras lo más cercano posible al detector. Por este motivo, en esta tesis hemos elegido la geometría cilíndrica mostrada en la Figura 6.1 para las muestras gruesas ambientales, es decir ubicando la muestra justo encima del detector.

#### 6.2. Preparación de las muestras

En esta tesis se utilizaron algunas muestras volumétricas de suelo, una muestra de sal de cloruro de potasio(Na + ClK) y una fuente cuasi-puntual de  ${}^{60}Co$ . Las muestras de suelo y arena fueron secadas, tamizadas, y luego envasadas en recipientes cilíndricos de acrílico de 8,1 cm de diámetro por 6,7 cm de alto y 1 mm de espesor. Se utilizó el mismo tipo de recipientes para todas las muestras salvo para la muestra de  ${}^{60}Co$ . Para su medición, tanto la fuente de cobalto como las muestras de suelo y sal fueron ubicadas directamente sobre la superficie de aluminio que cubre la cara superior del detector como se indicó en la sección anterior. Para hacer el estudio de variación de la eficiencia en función de la densidad se tomó una muestra de arena finamente tamizada (malla de  $1mm \times 1mm$ ) y se determinó la actividad para la muestra pura, luego, se fue mezclando distintas porciones de este material con diferentes cantidades de aserrín hasta obtener diferentes densidades definiendo la densidad como el cociente entre la masa de material y el volumen del recipiente. El aserrín, también fue tamizado obteniéndose

un polvo muy liviano cuya actividad fue previamente determinada para el material puro. La actividad encontrada fue



Figura 6.2: Muestra de aserrín puro finamente tamizado.

despreciable no detectándose la presencia de ningún elemento radiactivo. Las Figuras 6.2 y 6.3 ilustran las muestras de aserrín y diferentes mezclas obtenidas con él. Las Figuras 6.4 y 6.5 por su parte, ilustran muestras de arena y la muestra de sal.



Figura 6.3: Muestras de arena con diferentes proporciones de aserrín.



**Figura** 6.4: Muestras de arena con diferentes proporciones de aserrín y muestra de aserrín puro tamizado.



**Figura** 6.5: Muestra de sal (ClNa+ClK) con contenido de  ${}^{40}K$ .



Figura 6.6: Parte del instrumental utilizado.



Figura 6.7: Vista superior del detector.



**Figura** 6.8: Vista del Laboratorio mostrando el dispositivo experimental completo.

### 6.3. Determinación de los parámetros de convolución

Los parámetros de convolución a y b (ver ecuación (5.33)) que intervienen en la relación funcional entre  $\sigma$  (ver ecuaciones (5.30) y (5.31)) y el número de canal n (o la energía E), fueron obtenidos experimentalmente midiendo en el espectro de una muestra radiactiva en particular, el valor de  $\sigma$  (desviación estándar ver ecuaciones 5.30 y 5.31) correspondiente a determinados picos distribuidos en un rango de canales (o energía), de modo de cubrir todo el espectro. La Figura 6.9 muestra los valores obtenidos. Para el ajuste de las gaussianas y el cálculo de  $\sigma$ , se usó el software de ajuste de picos Pick-Fit4. Como puede verse en la Figura 6.9 la desviación estándar de los picos  $\sigma = \sigma(n)$  es aproximadamente lineal en todo el rango de energías considerado por lo tanto, la relación funcional para  $\sigma$  se tomó como una recta.

$$\sigma(n) = a \cdot n + b \tag{6.1}$$

Con los siguientes parámetros obtenidos experimentalmente:

$$a = (2,41 \pm 0,02) \times 10^{-4}$$

$$b = (1,360 \pm 0,008)$$

Dado que la varianza de los picos no depende del tamaño, ni de la forma de la muestra al menos para conteos bajos, como es el caso de los espectros de muestras ambientales; es posible utilizar estos mismos parámetros o relación funcional, para convolucionar los espectros de distintas muestras. Lo antedicho, fue verificado experimentalmente con espectros de fuentes radiactivas y muestras de diversos tipos. Para la determinación de los espectros se emplearon 8192 canales en el multicanal a los efectos de obtener picos bien definidos y factibles de ser ajustados mediante una gaussiana.



**Figura** 6.9: Valor de  $\sigma$  en función del número de canal para una muestra en particular.

# Capítulo 7 Resultados

En este capítulo, hemos aplicado los desarrollos de los Capítulos 4 y 5 al cálculo, estudio y análisis del espectro gamma de diversas fuentes radiactivas. Primeramente, se estudió el espectro monocromático de una fuente volumétrica de  ${}^{40}K$  contenido en una muestra de sal de consumo masivo (ClK) donde se analizan efectos de escape y producción de pares.

Posteriormente, estudiamos el espectro de una fuente de  ${}^{60}Co$  donde pueden observarse efectos de simultaneidad los cuales, son analizados y cuantificados.

Luego, se analizan y calculan el espectro polienergético de dos muestras de suelo, una con prominencia de elementos de la serie del  $^{238}U$  y la otra, con abundancia relativa de elementos de la cadena del  $^{232}Th$  donde se calculan las eficiencia de pico y se comparan las actividades obtenidas con fotopicos de diferentes elementos de la serie en equilibrio radiactivo. Se compararon los espectros obtenidos mediante simulación, con los espectros medidos.

Posteriormente, se muestran los resultados de una intercomparación realizada con el Laboratorio de Radiobiología de la Central Nucler de Embalse donde se comparan los resultados obtenidos usando muestras calibradas con los resultados obtenidos usando el método de simulación.

Por último, se hizo un estudio de la influencia de la densidad y la autoabsorción en la matriz usada como fuente.

# 7.1. Resultados obtenidos para una muestra volumétrica monocromática de ${}^{40}K$

A los efectos de chequear el correcto funcionamiento del programa de simulación, y estudiar la relación existente entre los distintos picos de un espectro sin la influencia de otras líneas, hemos simulado y medido el espectro de una fuente volumétrica monocromática de  ${}^{40}K$  contenido en una muestra de sal de uso comercial de bajo contenido sódico el cual es reemplazado por potasio. La muestra, fue envasada en un recipiente cilíndrico de acrílico del mismo tamaño que el empleado para medir el resto de las muestras ambientales. Se determinó el espectro durante un tiempo de 18 hs y a continuación, se realizó una medición del fondo de ambiente sin la muestra durante el mismo tiempo.

La Figura 7.1 muestra el espectro completo medido de la fuente de  ${}^{40}K$  con los diferentes picos característicos de su espectro tales como el fotopico, los picos de simple y doble escape y un pico debido a la creación de pares en la muestra que se superpone con el pico de 510,3 keV del fondo ambiente.



**Figura** 7.1: Espectro medido de una muestra volumétrica monoenergética de sal dietética (ClK) conteniendo  ${}^{40}K$ . Algunos picos que no están señalados son debidos al fondo.

Los cuatro picos, tienen un tamaño o número de cuentas que está relacionado con la probabilidad de ocurrencia de tales procesos. La actividad medida con cada de ellos, debe arrojar el mismo resultado esto nos permite hacer un estudio y verificar que la relación entre las cuentas de los picos y las eficiencias calculadas por simulación se cumple. Por este motivo, analizaremos cada uno de los picos separadamente comenzando por el fotopico luego analizaremos y calcularemos la actividad calculada con los picos simple y doble escape, y por último, analizaremos el pico de producción de pares en la muestra. El espectro simulado, fue obtenido haciendo coincidir el canal correspondiente al fotopico del espectro medido con el correspondiente al simulado.

El espectro simulado, fue luego comparado con el medido. Al espectro simulado, se le sumó el fondo de ambiente más un fondo espurio del modo descripto en las secciones 5.1 y 5.2 del Capítulo 5. Los resultados, se muestran en las Figuras 7.2, 7.3 y 7.4 mientras que en las Figuras 7.5, 7.6 y 7.7 se muestra el análisis de los picos doble y simple escape y el pico de producción de pares en la muestra. El  $^{40}K$ , es un elemento radiactivo que emite una partícula beta y un fotón gamma de 1460.83 keV. La Figura 7.2 muestra el ajuste en el fotopico mientras que las Figuras 7.3 y 7.4 muestran el ajuste en la porción media y en todo el espectro respectivamente. Se usó el mismo



**Figura** 7.2: Comparación entre el fotopico del espectro simulado, con el fotopico del espectro medido correspondiente a una muestra volumétrica de sal dietética (ClK).

parámetro para ajustar todo el espectro es decir, se ajustó el fotopico y con el mismo parámetro, se ajustó el resto del espectro. El espectro simulado total (simulado + fondo de ambiente + fondo espurio) está marcado con azul en la Figura 7.3. Solamente en la parte de bajas energías, puede notarse una



**Figura** 7.3: Comparación entre el espectro simulado y medido de una muestra volumétrica de sal (60% de ClK + 40% de Na) en la porción media (correspondiente al continuo compton) y baja del espectro.


**Figura** 7.4: Comparación entre el espectro simulado y medido de una muestra volumétrica de sal (60% de ClK + 40% de Na) en todo el rango de energias del espectro.

pequeña diferencia entre el espectro medido y el simulado que es atribuido a las cuentas espurias (espectro verde claro) y probablemente a los parámetros de corte. Puede observarse también, que los picos de simple y doble escape están presentes y son notables tanto en el espectro medido como en el simulado, pero ambos picos son despreciables en el espectro de fondo.

#### 7.1.1. Análisis de los picos simple y doble escape

El <sup>208</sup>Tl es un elemento que pertenece a la cadena radiactiva del <sup>232</sup>Th y por tanto, se encuentra en forma natural en el piso, paredes y techo del laboratorio. Tiene una línea gamma de 583,19 keV con una intensidad de 84,5 % y otra de 510,77 keV con intensidad de 22,6 %. Ambas líneas atraviesan el blindaje y aparecen en el espectro de fondo y eventualmente, pueden superponerse con las líneas de igual energía presentes en la muestra. La línea de 510,77 keV en particular, se superpone con la línea de 511 keV correspondiente a la aniquilación de positrones en la muestra.



**Figura** 7.5: Comparación entre el espectro medido y el simulado total en el pico doble escape. El factor de ajuste es el mismo que el usado para ajustar el fotopico.

Haciendo un análisis más detallado, podemos observar que la magnitud de los picos simple y doble escape, son comparables en ambos espectros es decir, son casi iguales mientras que el pico de 510,77 keV del  $^{208}Tl$  es

ligeramente más ancho en el espectro medido que en el simulado, pero sin embargo, sus áreas son muy similares. Este hecho, en principio es atribuible a la aniquilación de positrones en la muestra y será discutido con más detalle en la próxima sección. La Figura 7.5 muestra la comparación entre el espectro simulado y el medido en el pico de doble escape. Puede verse que tanto el área como el ancho de ambos picos coinciden, lo cual, no ocurre con el pico simple escape y el pico de creación de pares en la muestra. Esto, se debe a que al escapar los dos fotones del detector una leve variación en sus energías se verá reflejada en un corrimiento del pico como un todo y no en un ensanchamiento del mismo. Este aspecto, también será discutido con mas detalle en la sección siguiente. La Figura 7.5 muestra también que el pico doble escape como es comprensible, es despreciable en el espectro de fondo.

La Figura 7.6 por su parte, muestra la comparación entre los picos de simple escape en los espectros medido y simulado. Puede verse que mientras en el espectro medido el pico es ligeramente más bajo y más ancho, en el espectro simulado es más alto y más delgado, siendo sin embargo sus áreas muy similares.



**Figura** 7.6: Comparación entre el espectro medido y el simulado en el pico de simple escape. Como puede verse, este pico está ausente en el espectro de fondo.

Esto, significa que las actividades medidas con uno u otro pico deben arrojar el mismo resultado. El ensanchamiento en el pico de escape del espectro medido, se debe a la mismas razones que las debidas al ensanchamiento en el pico de aniquilación de positrones mencionado antes. Cuando se consideran muestras gruesas o fuentes de gran tamaño, deben tenerse en cuenta de acuerdo a la energía de los fotones, efectos de creación de pares en la muestra.

Este efecto, puede agregar cuentas a los picos ubicados a una energía muy cercana a los 511 keV como por ejemplo, el pico de 510,77 keV del  $^{208}Tl$ . La Figura 7.7 muestra el pico de aniquilación de positrones del espectro medido de la muestra de sal, superpuesto con los picos de 510,77 keV del  $^{208}Tl$  presente en el espectro de fondo y el espectro simulado puro sin los espectros de fondo.

Nuevamente, se observa y comprueba, que la suma de las áreas del pico de aniquilación de positrones del espectro simulado y el pico de 510,77 keV del  $^{208}Tl$  del fondo, es muy similar al área del pico correspondiente en el espectro medido. Esto, nos permite corroborar que dicho pico es la superposición del pico de aniquilación de positrones en la muestra con el pico de 510,77 keV del  $^{208}Tl$  proveniente del fondo de ambiente. Este, y otros aspectos son discutidos en la sección siguiente.

### 7.1.2. Análisis del ensanchamiento del pico de aniquilación de positrones

Cuando la muestra es grande como en el presente caso, y como lo son por lo general las muestras ambientales, pueden observarse efectos de ensanchamiento y aumento en el número de cuentas del fotopico de aniquilación de positrones producidos en la muestra. La aniquilación del positrón, produce dos fotones de energía 511 keV uno de los cuales, puede interactuar con el detector y entregar toda su energía formando un pico de esta energía que se superpone con el pico de 510,77 keV del <sup>208</sup>Tl.

Es razonable suponer, que tal aumento es debido a la producción de pares en la muestra y estará presente siempre que se consideren muestras grandes y energías por encima del umbral de 1022 keV necesario para que dicho proceso sea posible. A los efectos de corroborar estas hipótesis, hemos calculado la actividad de la fuente utilizando el número neto de cuentas del pico debido a la producción de pares, y la hemos comparado con la obtenida usando el pico energía total. Si las hipótesis asumidas son verdaderas, debería obtenerse el mismo valor de la actividad para los dos picos. El mismo análisis se hizo para los picos doble y simple escape. Los resultados se muestran en la Tabla 7.1 y en las Figuras 7.7 y 7.8 se ilustra el análisis. Las eficiencias, fueron obtenidas mediante simulación M C tomando en el archivo de salida del programa de simulación el valor de la eficiencia correspondiente a la energía del pico en cuestión, y se le restó la contribución debida al contínuo compton. Este último valor, se obtuvo como un promedio en el entorno del pico de los valores en el archivo de salida correspondientes al compton. El error, se tomó como el error estadístico del Monte Carlo proporcionado en la tercer columna del archivo de salida y se le sumó el error cometido al restar el compton. El error del contínuo compton se tomó como el promedio de las desviaciones respecto del valor medio en el entorno del pico investigado.

Los tres picos mencionados, pese a no tener un número de cuentas muy grande, nos permiten hacer un cálculo estimativo bastante aproximado. En muestras puntuales o pequeñas, es de esperar que el pico de creación de pares en la muestra sea despreciable, pero en muestras grandes es necesario estimar la influencia que puede llegar a tener este efecto en el espectro bajo estudio por las razones expuestas anteriormente.



**Figura** 7.7: Pico de aniquilación de positrones creados en la muestra simulado (azul), superpuesto con el pico de 510,77 keV del  $^{208}Tl$  del fondo (verde). El pico medido (rojo), es la combinación de ambos.

## 7.1.3. Cálculo de la actividad con los diferentes picos del espectro

En esta sección calculamos la actividad con los diferentes picos característicos del espectro de la muestra de  ${}^{40}K$ . a) Actividad calculada con el pico de producción de pares creados en la muestra.

Para obtener el número de cuentas netas debidas a la aniquilación de los positrones en la muestra hemos medido la diferencia entre el número de cuentas del fotopico en el espectro medido (rojo) y en el espectro de fondo más el compton (azul) en el pico de 510,77 keV del  $^{208}Tl$  como se muestra en la Figura 7.8. Luego, hemos obtenido la actividad mediante la ecuación

$$Actividad_{PPares} = \frac{N_{PPares}}{\epsilon_{PPares}} \frac{1}{I} \frac{100}{T}$$
(7.1)

donde  $N_{PPares}$  es la diferencia entre el número de cuentas del pico en el espectro medido y el espectro de fondo y que suponemos es igual al número de cuentas netas debidas a los fotones de aniquilación de los pares creados en la muestra. El valor para  $N_{PPares}$  obtenido mediante el procedimiento anterior es  $N_{PPares} = 1785 \pm 332^1$ . El parámetro  $\epsilon_{PPares}$  es la eficiencia correspondiente al pico de producción de pares, I es la intensidad de la línea en cuestión su valor es I = 11,0 (11%) mientras que el tiempo de medición T fue igual a T = 64800 s. La probabilidad (eficiencia) de que un fotón tenga un proceso de creación de pares en la muestra y luego, que uno de los fotones de aniquilación entregue toda su energía al detector fue obtenida por simulación MC con PENELOPE mediante el procedimiento descripto anteriormente resultando para el dispositivo en consideración igual a

$$\epsilon_{PPares} = (7, 6 \pm 0, 9) \times 10^{-5}$$

El valor obtenido para la actividad mediante la ecuación (7.1) es

$$Actividad_{PPares} = (3,3 \pm 0,9) \times 10^3$$
  $Bq$ 

El error de la actividad, se obtuvo haciendo propagación de errores en la ecuación (7.1). Por su parte, la actividad obtenida con el pico energía total fue calculada con la ecuación

$$Actividad_{Fotopico} = \frac{N_{AreaFotopico}}{\epsilon^P} \frac{1}{I} \frac{100}{T}$$
(7.2)

El valor obtenido para la actividad es

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Tomando el área del pico de producción de pares en el espectro simulado se obtiene un valor muy similar  $N_{PPares} = 1751 \pm 309$ 

$$Actividad_{Fotopico} = (3,32 \pm 0,06) \times 10^3 \quad Bq$$

siendo la eficiencia de pico igual a

$$\epsilon^P = (6,62 \pm 0,07) \times 10^{-3}$$

Como podemos ver, los valores para la actividad obtenidos con el pico de producción de pares y el fotopico de 1460,83 keV son coincidentes dentro del error. Es razonable suponer por tanto, que la diferencia de cuentas observada en el pico se debe a la creación de pares en la muestra.



**Figura** 7.8: Pico de aniquilación de positrones creados en una muestra volumétrica monocromática de  ${}^{40}K$ . Se muestra el pico de 510,77 keV del  ${}^{208}Tl$  del espectro de fondo (verde) que se filtra a través del blindaje y el espectro de fondo mas el contínuo compton (azul).

b) Actividad calculada con el pico simple escape

Si tomamos ahora el pico de simple escape podemos escribir la actividad como

$$Actividad_{SimpleEsc} = \frac{N_{SimpleEsc}}{\epsilon_{SimpleEsc}} \frac{1}{I} \frac{100}{T}$$
(7.3)

donde  $N_{SimpleEsc}$  es el número neto de cuentas del pico de simple escape y  $\epsilon_{SimpleEsc}$  es la eficiencia correspondiente. Representa la probabilidad de que un fotón emitido desde la fuente luego de tener un proceso de producción de pares en el detector y la posterior aniquilación del positrón, uno de los dos fotones de aniquilación interactúe con el detector y le entregue toda su energía; mientras que el segundo fotón, escape sin interactuar. La eficiencia del pico de simple escape fue obtenida por simulación MC siendo el resultado para la muestra considerada

$$\epsilon_{simpleEsc} = (6.0 \pm 0.8) \times 10^{-5}$$

La actividad correspondiente es

$$Actividad_{simpleEsc} = (3.2 \pm 0.9) \times 10^3 \ Bq$$

c) Actividad calculada con el pico de doble escape

Similarmente para el pico doble escape podemos escribir

$$Actividad_{DobleEsc} = \frac{N_{DobleEsc}}{\epsilon_{DobleEsc}} \frac{1}{I} \frac{100}{T}$$
(7.4)

 $N_{DobleEsc}$  es el número neto de cuentas del pico doble escape. La probabilidad de que ambos fotones escapen del detector, o eficiencia del pico de doble escape obtenida por simulación es

$$\epsilon_{DobleEsc} = (4.8 \pm 0.7) \times 10^{-5}$$

y la actividad correspondiente

$$Actividad_{DobleEsc} = (3,3 \pm 0,9) \times 10^3 \ Bq$$

mientras que el valor obtenido usando el fotopico es

$$Actividad_{Fotopico} = (3,32 \pm 0,07) \times 10^3 Bq$$

Los valores de la actividad corresponden a la actividad absoluta. La Tabla 7.1 contiene los valores para la actividad obtenidos con las ecuaciones 7.1, 7.2, 7.3 y 7.4. Como podemos observar, los valores para la actividad de la muestra calculados con los distintos picos del espectro coinciden dentro del error de manera bastante aceptable.

| Pico          | Eficiencia                   | Actividad (Bq)             |
|---------------|------------------------------|----------------------------|
| Simple Escape | $(6,0\pm0,8)\times10^{-5}$   | $(3,2\pm 0,9) \times 10^3$ |
| Doble Escape  | $(4,8\pm0,7)\times10^{-5}$   | $(3,3\pm0,9)\times10^3$    |
| P. Pares      | $(7,6\pm0,9)\times10^{-5}$   | $(3,3\pm 0,9) \times 10^3$ |
| Fotopico      | $(6,62\pm0,07)\times10^{-3}$ | $(3,32\pm0,06)\times10^3$  |

Tabla 7.1: Valores de la actividad de una muestra monocromática de  ${}^{40}K$  calculada usando los distintos picos característicos de su espectro.

## 7.2. Ajuste de una fuente de ${}^{60}Co$ . Ajuste del espectro de coincidencia obtenido por simulación

El  ${}^{60}Co$  es un elemento radiactivo que tiene un tiempo de vida media de 5,27 años y un espectro consistente en tan solo dos líneas gamma con energías 1173.23 keV y 1332.5 keV con intensidades de 99,97 % y 99,98 % respectivamente. Los fotónes de ambas energías, son emitidos en un intervalo de tiempo muy corto entre uno y otro, de modo que pueden ser considerados como simultáneos. Como tal, el  ${}^{60}Co$  es un isótopo ideal para estudiar efectos de coincidencia sin la intervención de otras líneas de energía.

Para obtener el espectro de coincidencia o simultaneidad, se simularon las dos líneas de energía del  ${}^{60}Co$  independientemente, luego a partir de estas, se obtuvo el espectro de coincidencia mediante la ecuación (3.46) y fue convolucionado con los mismos parámetros usados para el resto de los espectros. Los espectros individuales simulados de cada línea del  $^{60}Co$  por otro lado, también fueron convolucionados y se ajustaron al espectro medido siguiendo el procedimiento descripto en el Capítulo 5. Se comenzó ajustando el pico suma (espectro de coincidencia) y con el parámetro correspondiente, se obtuvo el espectro de coincidencia total. El espectro de coincidencia fue ajustado al espectro medido sobre el fondo en el pico suma, luego las otras dos líneas del cobalto, fueron ajustadas sobre el espectro de fondo más el espectro de coincidencia. La Figura 7.9, muestra el espectro medido de la fuente de cobalto superpuesto con el espectro de coincidencia calculado y convolucionado en todo el rango de energías. La Figura 7.10 por su parte, muestra el ajuste en la primera parte del espectro de coincidencia más la línea de 1338, 5 keV del  ${}^{60}Co$  ajustada sobre el espectro anterior.



**Figura** 7.9: Espectro medido de una fuente cuasi-puntual de  ${}^{60}Co$  superpuesto con el espectro de coincidencia en todo el rango de energías. Los picos observados en el espectro medido con energías superiores a 1400 keV que no están presentes en el espectro de coincidencia, son debidos al fondo.



**Figura** 7.10: Ajuste del pico suma más la primera parte del espectro de coincidencia, más la línea de 1338.5 keV del  $^{60}Co$ .

La Figura 7.11 muestra el ajuste en el fotopico de la línea de 1338,5 keV. Puede observarse una mínima diferencia



**Figura** 7.11: Ajuste en la parte media del espectro a la altura de la línea de 1338,5 keV. Se observa una exigua diferencia entre el compton del espectro simulado y el medido.



**Figura** 7.12: Ajuste entre el espectro simulado y el espectro medido en todo el rango de energías.

entre las cuentas del espectro medido y el compton del espectro simulado. Esto podría deberse al efecto de la correlación angular. Por último, la Figura 7.12 muestra el ajuste en todo el rango del espectro, se tomó en cuenta el espectro de coincidencia más el fondo, y los espectros simulados de las dos líneas del  $^{60}Co$ . Puede verse, que pese a la pequeña diferencia mencionada en la Figura 7.11, el ajuste entre el espectro medido y el simulado es bastante aceptable.

# 7.3. Resultados obtenidos para una muestra compleja de suelo con un contenido predominante de elementos de la serie del $^{238}U$

De acuerdo al método descripto en la sección 4.2, hemos ajustado y medido el espectro de una muestra con predominio de elementos de la cadena radiactiva del  $^{238}U$ . Este predominio, hace que la influencia de la mayoría de los picos de los elementos pertenecientes a las otras series radiactivas presentes, sea de menor importancia. Se comenzó identificando el pico de mayor energía en el espectro como se muestra en la Figura 7.13, en este caso, el pico de 2614, 53 keV del  $^{208}Tl$ . Si bien, el  $^{208}Tl$  pertenece a la cadena del  $^{232}Th$ , la presencia de esta línea es notable debido a su intensidad (99,79%). Pese a esto, el número de cuentas del fotopico es escaso, debido al bajo contenido de este elemento en la muestra. Esto hace que el error relativo en este caso sea apreciable. La Figura 7.14 muestra el espectro medido y el espectro de fondo en todo el rango de energias.



**Figura** 7.13: Ajuste del fotopico de mayor energía presente en el espectro. El pico verde es el pico del  $^{208}Tl$  presente en el piso y en el techo del Laboratorio.

El espectro fue obtenido con un tiempo de 18 hs. El fondo de ambiente fue obtenido haciendo una medición sin la muestra inmediatamente después de la medición con la muestra y durante el mismo tiempo. La medición del fondo también puede efectuarse, ubicando una muestra de densidad similar e igual forma y tamaño que la muestra medida pero sin contenido radiactivo. Al ajustar el fotopico, se ajusta con el mismo parámetro el fondo compton. La Figura 7.15 ilustra el ajuste del fotopico de la primera línea seguido del fondo compton. El segundo pico que se observa en el espectro simulado (azul) es el pico de escape de la línea de 2614,53 keV del <sup>208</sup>Tl, mientras que el pico situado por delante es el pico de 2118,55 keV del <sup>214</sup>Bi. Similarmente, la Figura 7.16 muestra el ajuste del segundo fotopico presente en el espectro,



**Figura** 7.14: Espectro medido de una muestra con un contenido predominante de elementos de la cadena del  $^{238}U$  y el espectro de fondo, en todo el rango de energías.



**Figura** 7.15: Comparación entre el espectro medido y el simulado más el fondo de ambiente en el primer pico del espectro. Se muestra el ajuste del fotopico y la primera parte del compton.

en este caso, el mismo pertenece al  $^{214}Bi$  el cual, a su vez pertenece a la

cadena radiactiva del  $^{238}U$ . La Figura 7.16, por su parte, muestra el ajuste de las dos primeras líneas con el respectivo fondo compton. La Figura 7.17 muestra el ajuste del fotopico la octava línea más el fondo de ambiente



**Figura** 7.16: Comparación entre el espectro medido y el simulado incluyendo las dos primeras líneas de energía más el fondo.



**Figura** 7.17: Octavo pico presente en el espectro en el orden de energías decrecientes. Se observa una pequeña diferencia de alrededor de 20 cuentas a ambos lados del fotopico debidas al fondo espurio.

pero sin el fondo espurio. A este nivel del ajuste comienza a observarse una pequeña diferencia entre el espectro simulado y el medido atribuible al fondo espurio. En la Figura 7.18 se muestra el ajuste de las ocho primeras líneas del espectro con el respectivo fondo compton y más el fondo de ambiente. La Tabla 7.2 contiene los valores de la actividad calculada para las líneas más intensas del espectro radiactivo de la muestra con predominio de elementos de la cadena del  $^{238}U$ .



**Figura** 7.18: Ajuste de la suma de las ocho primeros espectros simulados más el fondo mostrando el espectro suma completo sin el fondo espurio.

Puede observarse que los valores calculados con las distintas líneas de un mismo elemento o con las líneas de distintos elementos en equilibrio radiactivo, conducen al mismo valor de la actividad dentro del error. Un mismo valor del parámetro de ajuste, arroja el mismo valor de la actividad, en la tabla puede verse que dicho parámetro es el mismo para los distintas líneas de un mismo elemento.

La Figura 7.19 muestra los valores obtenidos para la actividad y el valor del parámetro de ajuste medio representado por una línea horizontal. Los elementos de la serie del  $^{232}Th$  aunque están presentes en la muestra son relativamente de menor importancia y para el ajuste del espectro fueron tenidas en cuenta únicamente las líneas de mayor intensidad ( $\geq 1\%$ ). La actividad para cada línea de energía, se determinó mediante la ecuación (7.5)

$$Actividad = \frac{AreaFotopico}{\epsilon^P} \frac{1}{T} \frac{100}{I}$$
(7.5)

Las magnitudes intervinientes en esta ecuación fueron definidas en el Capítulo 5. El fondo espurio se supone constante o aproximadamente rectilíneo entre los canales que abarca cada pico. El ajuste de las gaussianas se hizo por cuadrados mínimos. El error de la actividad se obtuvo haciendo propagación de errores en la ecuación (7.5)

Tabla 7.2: Valores de la actividad obtenidos para una muestra de arena para las principales líneas y elementos de la serie del  $^{238}U$  en equilibrio radiactivo.

| Energía (keV) | Elemento   | Actividad (Bq/Kg) | Parámetro<br>de ajuste (d) | I (%)    |
|---------------|------------|-------------------|----------------------------|----------|
|               |            |                   |                            |          |
| $2447,\!86$   | $^{214}Bi$ | $600 \pm 100$     | $2,\!15$                   | $1,\!57$ |
| 2204,21       | $^{214}Bi$ | $650 \pm 60$      | $2,\!17$                   | 5,08     |
| $2118,\!55$   | $^{214}Bi$ | $700 \pm 140$     | $2,\!43$                   | $1,\!14$ |
| 1847,42       | $^{214}Bi$ | $700 \pm 100$     | 2,26                       | 2,11     |
| 1729,59       | $^{214}Bi$ | $700 \pm 100$     | $2,\!35$                   | 2,92     |
| 1377,67       | $^{214}Bi$ | $660 \pm 60$      | 2,21                       | 4,00     |
| 1764,49       | $^{214}Bi$ | $660 \pm 30$      | 2,26                       | 15,4     |
| 1238,11       | $^{214}Bi$ | $630 \pm 40$      | 2,11                       | 5,79     |
| 1120,28       | $^{214}Bi$ | $630 \pm 30$      | 2,10                       | 15,1     |
| 934,06        | $^{214}Bi$ | $660 \pm 60$      | 2,19                       | 3,03     |
| 665, 45       | $^{214}Bi$ | $660 \pm 50$      | $2,\!17$                   | 1,46     |
| 609,31        | $^{214}Bi$ | $640 \pm 30$      | 2,115                      | 46,1     |
| $351,\!93$    | $^{214}Pb$ | $670 \pm 18$      | 2,20                       | $37,\!6$ |
| 295,22        | $^{214}Pb$ | $660 \pm 20$      | 2,162                      | 19,3     |
| 241,99        | $^{214}Pb$ | $670 \pm 30$      | 2,184                      | $7,\!43$ |
| 186,21        | $^{186}Ra$ | $650 \pm 30$      | 2,10                       | $3,\!59$ |

$$\Delta Actividad = \sqrt{\left(\frac{\partial Actividad}{\partial AreaFotopico}\Delta AreaFotopico\right)^2 + \cdots}$$
$$\sqrt{\cdots + \left(\frac{\partial Actividad}{\partial \epsilon^P}\Delta \epsilon^P\right)^2 + \left(\frac{\partial Actividad}{\partial I}\Delta I\right)^2 + \left(\frac{\partial Actividad}{\partial T}\Delta T\right)^2}$$
(7.6)

El error del área del fotopico  $\Delta AreaFotopico$  se tomó igual a

$$\Delta AreaFotopico = \sum_{m=Fotopico} \left( \sqrt{Medido(m)} + \sqrt{Fondo(m)} \right)$$
(7.7)

donde las sumatorias se extienden solamente al número de canales que abarca el fotopico, es decir, el error se tomó como igual a la suma de los errores individuales de cada canal correspondiente al fotopico. El error de la eficiencia de pico  $\epsilon^P$  es el error estadístico del Monte Carlo y es proporcionado por la tercer columna del archivo de salida del programa. El error de las intensidades se obtuvo de las tablas donde están acentados los valores de las intensidades.

La Figura 7.16 muestra los valores de la actividad contenidos en la Tabla 7.2. Como puede verse en esa figura, los valores de la actividad calculados para las distintas líneas coinciden dentro del error. La línea horizontal, representa el valor promedio de la actividad para las líneas consideradas. Como ya se dijo, el área neta de cada fotopico (AreaFotopico) en la ecuación (7.5) se tomó como la suma de las cuentas netas de una gaussiana ajustada al fotopico sobre el fondo total de las líneas de mayor energía.

En el caso de que haya más de una gaussiana formando parte del pico, se tomó el área de la gaussiana correspondiente a la línea ajustada al pico conjuntamente con las otras que componen el pico como se explicó en el Capítulo 5. El tiempo de medición, implementado fue de 18 hs (64800 s) para algunas de las muestras de suelo y la muestra de sal. El parámetro  $\epsilon^P$ es la eficiencia de pico y fue obtenida por simulación MC. Las intensidades I, fueron obtenidas de las tablas de Browne and Firestone[80][81]. El valor promedio pesado del parámetro de ajuste con respecto a la intensidad de cada línea es

$$d = 2,17 \pm 0,09$$

El valor medio de la actividad correspondiente a este coeficiente es

$$a = 654 \pm 30$$
  $Bq/Kg$ 

**Figura** 7.19: Actividad obtenida para las líneas más intensas presentes en el espectro de una muestra con predominio de elementos de la cadena del  $^{238}U$ .

## 7.4. Resultados obtenidos para una muestra con un contenido predominante de elementos pertenecientes a la serie del $^{232}Th$

Siguiendo los pasos del caso anterior, hemos ajustado una segunda muestra conteniendo concentraciones similares de elementos pertenecientes a las series del  $^{232}Th$  y del  $^{238}U$ . La Figura 7.17, muestra el ajuste del primer pico del espectro que como en el caso anterior, también pertenece al  $^{208}Tl$ . En este caso, el número de cuentas es mayor y por consiguiente el pico está mejor definido lográndose por consiguiente, un mejor ajuste. A continuación, en la Figura 7.18 se muestra el ajuste de las primeras cinco líneas del espectro. La cuarta línea que aparece en el espectro, es el pico de simple escape de la línea de 2614,53 keV del  $^{208}Tl$  y está por tanto contemplada en la simulación. Muestra con predominio de elementos de la serie del  $^{232}Th$ 

La Figura 7.19, ilustra el ajuste en la parte media del espectro. La Figura 7.20 muestra la comparación entre el espectro medido y el simulado en la parte de bajas energías. La Figura 7.21 por su parte, muestra la comparación entre el espectro medido y el simulado más el fondo en el rango total del espectro.



**Figura** 7.20: Ajuste del primer pico del espectro de una muestra con contenido predominante de elementos de la serie del  $^{232}Th$ .

La Figura 7.22 muestra los valores de la actividad obtenida con los líneas de los diferentes elementos de la serie del  $^{232}Th$  en equilibrio radiactivo. Puede observarse también, en este caso, que las actividades obtenidas con las diferentes líneas coinciden dentro del error. La Figura 7.23 muestra los valores de la actividad medidos con cada una de las principales líneas del  $^{208}Tl$  solamente. La Tabla 7.3 contiene los valores obtenidos para la actividad de los elementos radiactivos de esta muestra.



Figura 7.21: Ajuste de las primeras cinco líneas del espectro.



**Figura** 7.22: Comparación entre el espectro medido y el simulado más el fondo en la parte media del espectro. Las líneas con intensidades < 1% no fueron tenidas en cuenta en el simulado por esta razón, hay picos que están presentes en el medido pero no en el simulado.



**Figura** 7.23: Comparación entre el espectro medido y el simulado mas el fondo sin el fondo espurio en la parte baja del espectro.



**Figura** 7.24: Comparación entre el espectro medido y el simulado total más el fondo de ambiente y el fondo espurio a lo largo de todo el rango de energías.



**Figura** 7.25: Valores de la actividad obtenida con las principales líneas de energía de la serie del  $^{232}Th$  de una muestra policromática de suelo. Los valores correspondientes al  $^{208}Tl$  fueron divididos por 0.36 debido a la ramificación de la cadena.



**Figura** 7.26: Valores de la actividad obtenidas con las principales líneas del  $^{208}Tl$  solamente.

| Energía (keV) | Elemento   | Intensidad (%)       | Actividad (Bq/Kg) |
|---------------|------------|----------------------|-------------------|
| 2614,53       | $^{208}Tl$ | 99,0                 | $28 \pm 2$        |
| $2447,\!86$   | $^{214}Bi$ | $1,\!57\pm0,\!04$    | $45 \pm 22$       |
| $1847,\!42$   | $^{214}Bi$ | $2{,}11\pm0{,}03$    | $47\pm16$         |
| 1764, 49      | $^{214}Bi$ | $15{,}4\pm0{,}2$     | $45 \pm 5$        |
| $1630,\!63$   | $^{228}Ac$ | $1{,}51\pm0{,}04$    | $76 \pm 20$       |
| $1620,\!50$   | $^{214}Bi$ | $1,\!49\pm0,\!03$    | $82 \pm 12$       |
| 1588, 19      | $^{228}Ac$ | $3{,}22\pm0{,}08$    | $86 \pm 17$       |
| 1460, 83      | ${}^{40}K$ | $11,0\pm0,1$         | $77\pm29$         |
| $1377,\!67$   | $^{214}Bi$ | $4{,}00\pm0{,}06$    | $47 \pm 10$       |
| 1238, 11      | $^{214}Bi$ | $5{,}79\pm0{,}08$    | $44 \pm 8$        |
| 1120,28       | $^{214}Bi$ | $15{,}1\pm0{,}2$     | $40 \pm 5$        |
| $968,\!97$    | $^{228}Ac$ | $15{,}8\pm0{,}3$     | $77\pm 6$         |
| 964,766       | $^{228}Ac$ | $4{,}99\pm0{,}09$    | $81 \pm 9$        |
| 934,061       | $^{214}Bi$ | $3{,}03\pm0{,}04$    | $38 \pm 14$       |
| $911,\!204$   | $^{228}Ac$ | $25{,}8\pm0{,}4$     | $75 \pm 4$        |
| 860,564       | $^{208}Tl$ | $12{,}42\pm0{,}10$   | $31 \pm 4$        |
| $794,\!947$   | $^{228}Ac$ | $4{,}25\pm0{,}7$     | $76 \pm 9$        |
| $727,\!33$    | $^{212}Bi$ | $6{,}58\pm0{,}05$    | $79 \pm 9$        |
| 609,312       | $^{214}Bi$ | $46,1\pm0,5$         | $41\pm2$          |
| $583,\!191$   | $^{208}Tl$ | $84{,}5\pm0{,}7$     | $28 \pm 1$        |
| 510,77        | $^{208}Tl$ | $22,\!6\pm0,\!3$     | $28 \pm 2$        |
| 463,004       | $^{228}Ac$ | $4{,}40\pm0{,}07$    | $72\pm 8$         |
| $351,\!932$   | $^{214}Pb$ | $37,6\pm0,4$         | $44 \pm 2$        |
| $338,\!320$   | $^{228}Ac$ | $2,\!95\pm0,\!12$    | $78 \pm 4$        |
| 300,08        | $^{212}Pb$ | $3{,}28\pm0{,}03$    | $81 \pm 13$       |
| $295,\!224$   | $^{214}Pb$ | $19,3\pm0,2$         | $42 \pm 3$        |
| $277,\!351$   | $^{208}Tl$ | $6{,}31\pm0{,}09$    | $27 \pm 5$        |
| $270,\!245$   | $^{228}Ac$ | $3,\!46\pm0,\!06$    | $82 \pm 12$       |
| $241,\!997$   | $^{214}Pb$ | $7{,}43 \pm 0{,}11$  | $48 \pm 6$        |
| 240,986       | $^{224}Ra$ | $4,\!10\pm0,\!05$    | $91 \pm 16$       |
| $238,\!632$   | $^{212}Pb$ | $43,3\pm0,4$         | $85 \pm 2$        |
| 209,253       | $^{228}Ac$ | $3,\!89\pm0,\!07$    | $79 \pm 10$       |
| 186,211       | $^{226}Ra$ | $3,\!59\pm0,\!06$    | $45 \pm 10$       |
| 185,712       | $^{235}U$  | $57,2\pm0,5$         | $2,0\pm0,3$       |
| 143,764       | $^{235}U$  | $10{,}96 \pm 0{,}08$ | $2\pm1$           |

Tabla 7.3: Principales energías (intensidad > 1,0%) presentes en el espectro de una muestra con prominencia de elementos de la serie del <sup>232</sup>Th.

### 7.5. Intercomparación con el Laboratorio de Radiobiología de la Central Nuclear de Embalse

A los efectos de reforzar la credibilidad de los resultados del método de simulación desarrollado en esta tesis, se hizo una inter-comparación de mediciones entre nuestro Laboratorio y el Laboratorio de Radiobiología de la Central Nuclear de Embalse. Para esto, se escogieron tres muestras de suelo y se midió su actividad por un lado, aplicando el método de simulación aquí implementado y por otro lado, el Laboratorio de Radiobiología midió las mismas muestras utilizando la metodología de calibración con muestras de referencia. Los resultados obtenidos por ambos Laboratorios, fueron cotejados[77] y son mostrados en la Tabla 7.4. y en las Figuras 7.27, 7.28 y 7.29. Los resultados, aunque muestran diferencias nos permiten decir que la comparación en general es buena. Estas diferencias, son normales en ejercicios de intercomparación[82] y pueden atribuirse en nuestro caso a diferencias de densidad



**Figura** 7.27: Comparación entre los valores obtenidos usando el método de simulación y usando muestras calibradas en el Laboratorio de Radiobiología de la Central Nuclear para la muestra n<sup>o</sup> 1.

y composición entre las muestras simuladas y la muestra tomada como patrón. Es decir, podría ocurrir por ejemplo, que la muestra calibrada no tenga el mismo tamaño ni la misma densidad que las muestras medidas.

Tabla 7.4: Comparación entre los resultados obtenidos para la actividad específica (Bq/Kg) medidas por nuestro Laboratorio (a) y el Laboratorio de Radiología Ambiental (b).

| sótopo<br>Vombre | mues<br>a    | tra 1<br>b   | mues<br>a   | tra 2<br>b   | mues<br>a    | tra 3<br>b   |
|------------------|--------------|--------------|-------------|--------------|--------------|--------------|
|                  |              |              |             |              |              |              |
|                  | $70 \pm 5$   | $93 \pm 5$   | $56 \pm 4$  | $76 \pm 4$   | $95 \pm 5$   | $124 \pm 6$  |
|                  | $81 \pm 10$  | $57 \pm 4$   | $70 \pm 10$ | $50 \pm 4$   | $117 \pm 13$ | $86\pm6$     |
|                  | $44 \pm 3$   | $56 \pm 3$   | $37 \pm 3$  | $48 \pm 3$   | $59 \pm 3$   | $69 \pm 4$   |
|                  | $605 \pm 37$ | $825\pm35$   | $597\pm38$  | $791 \pm 34$ | $724 \pm 42$ | $900 \pm 38$ |
|                  | $81 \pm 2$   | $99 \pm 8$   | $65 \pm 2$  | $79\pm 67$   | $110 \pm 2$  | $132 \pm 1$  |
|                  | $47 \pm 2$   | $60 \pm 5$   | $42 \pm 2$  | $51 \pm 4$   | $65 \pm 3$   | $75\pm 6$    |
|                  | $100 \pm 9$  | $111 \pm 12$ | $98\pm 8$   | $112\pm12$   | $152\pm15$   | $167\pm16$   |
|                  | $26 \pm 1$   | $33 \pm 2$   | $20\pm 3$   | $28 \pm 2$   | $35 \pm 2$   | $43 \pm 3$   |

Cuando se realizan ejercicios de inter-comparación pueden producirse errores que no son de tipo estadístico como el mencionado. Las Figuras 7.30 y 7.31 dan fundamento a esta argumentación, y muestran algunos resultados de dos inter-comparaciones de mediciones entre trece y catorce importantes laboratorios de radiactividad de Europa[82]



**Figura** 7.28: Comparación entre los valores obtenidos usando el método de simulación y usando muestras calibradas en el Laboratorio de Radiobiología de la Central Nuclear de Embalse para la muestra nº 2.



**Figura** 7.29: Comparación entre los valores obtenidos usando el método de simulación y usando muestras calibradas en el Laboratorio de Radiobiología de la Central Nuclear de Embalse para la muestra nº 3.

que usan el método de fuentes calibradas para calcular la actividad de muestras del mismo tipo que las analizadas aquí. Como puede verse allí, las diferencias entre los valores medidos por dos laboratorios distintos, en algunos casos superan el 50 % y exceden las diferencias obtenidas en nuestro caso.

Haciendo un análisis más detallado de las discrepancias obtenidas entre nuestro Laboratorio y el de la Central, podemos observar en la Tabla 7.4 que si comparamos las actividades obtenidas con las líneas de 727,25 keV del <sup>212</sup>Bi y la obtenida con la línea de 238,58 keV del <sup>212</sup>Pb en nuestro caso (a) coinciden; pero en el caso del Laboratorio (b) no están ni siquiera dentro del error. Ambos valores, deberían coincidir dado que dichos elementos están en equilibrio radiactivo y uno decae en el otro con un tiempo de vida media muy corto (10,6 hs) como para permitir una fuga del elemento. Este error puede deberse por ejemplo, a que la muestra calibrada usada por el laboratorio (b) no contiene entre sus radioisótopos <sup>212</sup>Bi o <sup>212</sup>Pb debiéndose calcular esta línea, con otra energía cercana pero con distinta eficiencia. Este hecho, introducirá un error que dependerá de la línea que se utilize. Esto es para citar solo un ejemplo donde tales discrepancias pueden producirse y justificar las diferencias observadas.

Algo similar, ocurre entre las líneas del  $^{228}Ac$  y las líneas del  $^{208}Tl$ . La actividad de una línea del  $^{208}Tl$  dividida por 0,36 debe dar el mismo valor que la actividad medida con una línea del  $^{228}Ac$  debido a la ramificación de la cadena en el  $^{212}Bi$ . En este caso, esta condición se cumple para las mediciones obtenidas por ambos Laboratorios.

La figuras 7.30 y 7.32 muestran los resultados para la actividad específica o concentración de  $^{226}Ra$  contenido en una misma muestra de suelo. La Figura 7.30 a diferencia de la 7.32 muestra los valores con sus respectivos intervalos de error obtenidos por catorce laboratorios de radiactividad de Europa. Una estadística realizada con los valores graficados arroja los resultados contenidos en la Tabla 7.5. Podemos observar, en la figura 7.32 que siete valores quedan fuera del intervalo de confianza. Esto nos permite hacer el suiguiente análisis, como podemos ver en la figura mencionada, hay valores que aunque están poco distanciados, por ejemplo los codificados con los números 10 y 11 ambos caen fuera del intervalo de confianza mientras que hay valores más distanciados como por ejemplo los correspondientes a los laboratorios con códigos 3 y 12 cuyos intervalos de error no coinciden y que sin embargo, casi están dentro del intervalo de confianza.

Algo parecido, podría atribuírse a las diferencias ocurridas con nuestro ejercicio de intercomparación. No tiene sentido hacer una estadística con tan solo dos valores pero sin embargo, podriamos argumentar que si éstos formaran parte de una estadística mayor podría ocurrir que el valor medio caiga entre ambos valores y que pese a la diferencia, ambos estén dentro del intervalo de confianza.



**Figura** 7.30: Resultados oficiales de un ejercicio de intercomparación entre catorce Laboratorios de radiaciones de Europa.



**Figura** 7.31: Resultados oficiales de un ejercicio de intercomparación entre trece Laboratorios de radiaciones de Europa.

La Figuras 7.31, 7.33 y la Tabla 7.6 por su parte, muestran los resultados

para la actividad específica de  $^{228}Ac$  contenido en una muestra de arena medida con la línea de 911,07 keV. También en este caso, podemos observar que cinco valores caen por fuera del intervalo de confianza y hay discrepancias que exceden el 70 %.

| Valor medio: 34,0 Bq/Kg          | Desviación estandar: 5,9 Bq/Kg |
|----------------------------------|--------------------------------|
| Valor máximo: $42 \text{ Bq/Kg}$ | Valor mínimo: 28               |
| Error estadístico de la media:   | Intervalo de confidencia:      |
| $1,6 { m ~Bq/Kg}$                | (30,8-37,2) Bq/Kg              |

Tabla 7.5: Parámetros estadísticos de un conjunto de mediciones de la actividad de  $^{226}Ra$  contenido en una muestra de suelo realizadas por catorce laboratorios de radiactividad de Europa.



**Figura** 7.32: Resultados oficiales de un ejercicio de intercomparación entre catorce importantes laboratorios de Europa. Las líneas punteadas representan un intervalo de confidencia del 95 %. Las líneas contínuas representan una desviación del 12.5 % del valor medio.

La Figura 7.34 muestra los laboratorios cuyos resultados, caen dentro y fuera de un intervalo porcentual entre 25~%y75~%resultante del ejercicio de

intercomparación. En la figura, se muestra con una tilde aquellos laboratorios cuyos valores caen fuera de dicho intervalo y con un espacio en blanco aquellos que cumplen esta condición. Podemos ver, que ningún laboratorio satisface tener todos sus espacios en blanco para todas las muestras.

| Valor medio: $4,43 \text{ Bq/Kg}$  | Desviación estandar: $0,83 \text{ Bq/Kg}$ |
|------------------------------------|---|
| Valor máximo: $5,74 \text{ Bq/Kg}$ | Valor mínimo: 2,5                         |
| Error estadístico de la media:     | Intervalo de confidencia:                 |
| $0,26~{ m Bq/Kg}$                  | (3,91-4,95)  Bq/Kg                        |

Tabla 7.6: Parámetros estadísticos de un conjunto de mediciones de la actividad de  $^{228}Ac$  contenido en una muestra de arena realizado por 12 laboratorios de radiactividad de Europa.



**Figura** 7.33: Resultados oficiales de un ejercicio de intercomparación entre catorce importantes laboratorios de Europa. Las líneas punteadas representan un intervalo de confidencia del 95 %.

|   |   |     |     | LA  | B   | OR | АТ  | OR  | Y   | :01 | DE  |      |    |    |         |  |
|---|---|-----|-----|-----|-----|----|-----|-----|-----|-----|-----|------|----|----|---------|--|
|   | E   | IE  | 2   | E3  | E4  | E  | 5 E | 6 E | 7 E | 8 E | 9 E | 10 E | 11 | EI | 2 E I 3 |  |
| <sup>226</sup> Ra Phosphate<br>(ALL LINES)        | ·   | ••• | ,   |     |     | ~  |     |     | •   |     |     |      |    |    |         |  |
| <sup>226</sup> Ra Sand<br>(ALL LINES)             |   | ) ( | ]   | r   |     | ~  |     |     |     |     | ••• | • •  | 2  |    | ~       |  |
| <sup>226</sup> Ra Phosphate<br>(609.32 keV LINE)  |   |     | • ( |     |     | ~  |     | ~   | • • | •   |     | ם נ  | 2  |    |         |  |
| <sup>224</sup> Ra Sand<br>(609.32 keV LINE)       |   |     | ) ( |     | -   |    |     | ~   |     |     | • • |      | 1  | ~  | -       |  |
| <sup>226</sup> Ra Phosphate<br>(1764.51 keV LINE) | ~   |     | · ( |     |     |    |     |     | ~   |     |     |      | )  | -  |         |  |
| <sup>226</sup> Ra Sand<br>(1764.51 keV LINE)      |   |     |     | /   | -   |    |     | ~   |     |     | ~   |      | 1  | -  | -       |  |
| <sup>228</sup> Ac Phosphate<br>(ALL LINES)        |   | ~   |     | 3 ( |     |    | ~   | ~   |     | -   | -   |      |    | ~  |         |  |
| <sup>228</sup> Ac Sand<br>(ALL LINES)             |   |     |     |     | /   |    |     | ~   |     |     | -   | ~    |    | r  | r       |  |
| <sup>228</sup> Th Phosphate<br>(ALL LINES)        | ~   |     |     |     |     |    | ~   | ~   |     |     | ~   |      | (  |    | ~       |  |
| <sup>228</sup> Th Sand<br>(ALL LINES)             | ~   |     |     |     | ב   | ~  |     | ~   |     |     |     |      | (  |    | ~       |  |
| ≪K Phosphate<br>(1460.75 keV LINE)                |   | ~   |     |     |     |    |     | v   |     | ~   |     | ~    | 0  |    |         |  |
| °K Sand<br>(1460.75 keV LINE)                     |   | ~   | ~   |     | ) ( |    |     | v   |     | ~   | ~   |      | •  | ,  |         |  |
| (🗌 = IN, 🖌 = OUT                                  | r)  |     |     |     |     |    |     |     |     |     |     |      |    |    |         |  |
| LABORATORIES W<br>25%-75%                         | LABORATORIES WHICH RESULTS ARE IN BETWEEN THE PERCENTILES<br>25%-75% (IN) AND OUTSIDE OF THIS RANGE (OUT) |     |     |     |     |    |     |     |     |     |     |      |    |    |         |  |

**Figura** 7.34: Resultados oficiales de un ejercicio de intercomparación entre trece laboratorios de Europa. Los resultados marcados con tilde indican valores que están fuera del intervalo entre 25 % y 75 %. Podemos ver, que ningún laboratorio satisface la condición de estar dentro del intervalo de confianza en todos los casos.

## 7.6. Estudio de la influencia de la densidad de la muestra en la eficiencia de pico y eficiencia total de una fuente volumétrica

# 7.6.1. Eficiencia de pico y eficiencia total en función de la densidad y la energía

En la determinación de la actividad de muestras ambientales, usualmente se utilizan muestras de gran volúmen y fuentes calibradas de determinadas características y densidades como patrón[83]. Las muestras a medir sin embargo, rara vez coinciden con la densidad de la muestra elegida como patrón. Es importante por tanto, conocer cómo varía la eficiencia de pico y la eficiencia total al variar la densidad de la muestra[84]. Por este motivo, en esta sección hacemos un análisis o estudio de la auto-absorción en una muestra de suelo, calculando la eficiencia para distintas densidades y energías. La forma y las dimensiones de la muestra simulada, se tomó igual al de las muestras medidas. La geometría del dispositivo, fue la misma que la usada para el resto de las muestras. Los valores obtenidos están asentados en las Tablas 7.7, 7.8. y 7.9

Tabla 7.7: Valores de la eficiencia total  $\epsilon^T$  y de la eficiencia de pico  $\epsilon^P$  para una densidad de 1,67  $(g/cm^3)$  y distintas energías, obtenidas mediante simulación Monte Carlo.

| Energía          | Densidad =            | $1,67 \ (g/cm^3)$       |
|------------------|-----------------------|-------------------------|
| $(\mathrm{keV})$ | Efic. total           | Efic. de pico           |
| 2614,53          | $0,04740 \pm 0,00009$ | $0,\!00401\pm0,\!00007$ |
| 1764, 49         | $0,0499 \pm 0,0001$   | $0,00539 \pm 0,00008$   |
| 1460,83          | $0,\!0519\pm0,\!0001$ | $0,\!0062\pm0,\!0001$   |
| 1120,29          | $0,0554 \pm 0,0002$   | $0,0075 \pm 0,0001$     |
| 911,20           | $0,0586 \pm 0,0002$   | $0,\!0086 \pm 0,\!0002$ |
| 609,31           | $0,0639 \pm 0,0002$   | $0,\!0113\pm0,\!0002$   |
| 351,93           | $0,0725 \pm 0,0002$   | $0,0169 \pm 0,0002$     |
| 238,63           | $0,0789 \pm 0,0002$   | $0,\!0229\pm0,\!0002$   |

| Tabla 7.8: | Valores de l | a eficienc                 | ia total $\epsilon$        | T y de la e | ficiencia de | e pico $\epsilon^P$ pa      | ara tres |
|------------|--------------|----------------------------|----------------------------|-------------|--------------|-----------------------------|----------|
| densidades | distintas y  | $\operatorname{distintas}$ | $\operatorname{energ}$ ías | obtenidas   | mediante     | $\operatorname{simulación}$ | Monte    |
| Carlo.     |              |                            |                            |             |              |                             |          |

| Energía          | Densidad =                       | $1,31 \ (g/cm^3)$                 |
|------------------|----------------------------------|-----------------------------------|
| $(\mathrm{keV})$ | Efic. total                      | Efic. de pico                     |
| 2614,53          | $0,04589 \pm 0,00009$            | $0,00403 \pm 0,00007$             |
| 1764,49          | $0,0484 \pm 0,0001$              | $0,00566 \pm 0,00009$             |
| 1460,83          | $0,\!0505\pm0,\!0001$            | $0,0066 \pm 0,0001$               |
| 1120,29          | $0,\!0536 \pm 0,\!0001$          | $0,0080 \pm 0,0002$               |
| 911,20           | $0,\!0564\pm0,\!0002$            | $0,0093 \pm 0,0002$               |
| 609,31           | $0,0623 \pm 0,0002$              | $0,0123 \pm 0,0002$               |
| $351,\!93$       | $0,\!0707\pm0,\!0002$            | $0,\!0191\pm0,\!0002$             |
| $238,\!63$       | $0,\!0773 \pm 0,\!0002$          | $0,\!0261\pm0,\!0002$             |
| Energía          | Densidad =                       | $1,10 \ (g/cm^3)$                 |
| $(\mathrm{keV})$ | Efic. total                      | Efic. de pico                     |
| $2614,\!53$      | $0,\!0452\pm0,\!0001$            | $0,\!00416 \pm 0,\!00007$         |
| 1764, 49         | $0,\!0477 \pm 0,\!0001$          | $0,0058 \pm 0,0001$               |
| 1460,83          | $0,\!0496 \pm 0,\!0001$          | $0,\!0068 \pm 0,\!0001$           |
| 1120,29          | $0,\!0527\pm0,\!0002$            | $0,0083 \pm 0,0002$               |
| 911,20           | $0,\!0557 \pm 0,\!0002$          | $0,0097 \pm 0,0002$               |
| 609,31           | $0,\!0613\pm0,\!0003$            | $0,\!0130\pm0,\!0002$             |
| $351,\!93$       | $0,\!0695\pm0,\!0002$            | $0,\!0204\pm0,\!0002$             |
| $238,\!63$       | $0,\!0763 \pm 0,\!0002$          | $0,\!0282\pm0,\!0002$             |
| Energía          | Densidad =                       | $0,96 \ (g/cm^3)$                 |
| $(\mathrm{keV})$ | Efic. total                      | Efic. de pico                     |
| $2614,\!53$      | $0,\!04466 \pm 0,\!00008$        | $0,00424 \pm 0,00006$             |
| $1764,\!49$      | $0,\!0470\pm0,\!0002$            | $0,\!0060\pm0,\!0001$             |
| 1460,83          | $0,\!0491 \pm 0,\!0002$          | $0,0070 \pm 0,0001$               |
| 1120,29          | $0,\!0524\pm0,\!0001$            | $0,0086 \pm 0,0001$               |
| 911,20           | $0,\!0550\pm0,\!0001$            | $0,\!00994 \pm 0,\!00009$         |
| 609,31           | $0,\!0\overline{606\pm0,\!0001}$ | $0,\!0\overline{136\pm 0,\!0001}$ |
| 351,93           | $0,\!0688\pm0,\!0001$            | $0,\!0214\pm0,\!0002$             |
| 238,63           | $0,\!0756 \pm 0,\!0001$          | $0,0298 \pm 0,00009$              |
| Energía | Densidad = $0,6148 \ (g/cm^3)$ |                       |
|---------|--------------------------------|-----------------------|
| (keV)   | Efic. total                    | Efic. de pico         |
| 2614,53 | $0,\!0446 \pm 0,\!0001$        | $0,00424 \pm 0,00007$ |
| 1764,49 | $0,0470 \pm 0,0001$            | $0,0060 \pm 0,0001$   |
| 1460,83 | $0,\!0491 \pm 0,\!0001$        | $0,0070 \pm 0,0001$   |
| 1120,29 | $0,\!0524\pm0,\!0002$          | $0,0086 \pm 0,0002$   |
| 911,20  | $0,\!0550\pm0,\!0002$          | $0,0099 \pm 0,0002$   |
| 609,31  | $0,0606 \pm 0,0003$            | $0,0136 \pm 0,0003$   |
| 351,93  | $0,0688 \pm 0,0003$            | $0,0214 \pm 0,0002$   |
| 238,63  | $0,0737 \pm 0,0002$            | $0,0297 \pm 0,0002$   |

Tabla 7.9: Valores de la eficiencia total  $\epsilon^T$  y de la eficiencia de pico  $\epsilon^P$  para una densidad de 0,6148  $(g/cm^3)$  y distintas energías, obtenidas mediante simulación Monte Carlo.

las Figuras 7.35, 7.36, 7.37 y 7.38 por su parte, muestran las eficiencias totales y las eficiencias de pico para las distintas densidades consideradas.



**Figura** 7.35: Eficiencia total en función de la energía para distintas densidades de una muestra volumétrica.



**Figura** 7.36: Eficiencia de pico en función de la energía para distintas densidades de una muestra volumétrica.



**Figura** 7.37: Eficiencia de pico en función de la energía entre [0; 1000] keV para distintas densidades de una muestra volumétrica.



**Figura** 7.38: Eficiencia de pico en función de la energía entre [1000; 2700] keV para distintas densidades de una muestra volumétrica.

La eficiencia de pico en función de la densidad  $\rho$  y la energía del fotón incidente E que ajusta a los valores de las Tablas 7.7, 7.8 y 7.9 para la geometría y el rango de energías y densidades utilizado, está dada por la siguiente función

$$\epsilon^{P}(\rho, E) = a(\rho) E^{b(\rho)} \tag{7.8}$$

donde

$$a(\rho) = 6,0001483 - (4,70212999)\rho + (1,10105376)\rho^2$$

y donde

$$b(\rho) = -0.92180516 + (0.11684092)\rho$$



**Figura** 7.39: Eficiencia de pico  $\epsilon_P$  en función de la energía y la densidad.

## 7.6.2. Relación entre el área del fotopico, la eficiencia de pico, y la masa de material radiactivo

En la sección anterior obtuvimos la eficiencia de pico y la eficiencia total en función de la energía y la densidad para una muestra, mediante cálculos Monte Carlo. En esta sección, deducimos una relación que nos permite vincular la actividad, con la eficiencia de pico y la masa o densidad de una muestra. Es decir, obtenemos una relación que nos permite vincular cantidades medidas con cantidades calculadas y verificar su cumplimiento. La idea es que si se mezcla una cantidad de material radiactivo de cierta densidad y determinada actividad, y luego, se separa una fracción de este material y se mezcla con otro material sin contenido radiactivo, la actividad media se reducirá en igual proporción. Así, por ejemplo, si tenemos una cantidad de material radiactivo contenido en una muestra de suelo o en una muestra cualquiera, y luego, sacamos la mitad de material y lo mezclamos con otro más liviano o más pesado la actividad debe reducirse a la mitad pero sus densidades serán distintas y podremos relacionar magnitudes medidas con magnitudes calculadas. Si conocemos la cantidad de material que hemos searado y la masa del material que hemos agregado, podremos conocer la relación entre las densidades. Por otro lado, debemos medir y conocer la relación entre las actividades y compararlas. Para esto, hemos disuelto una sustancia con cierto contenido radiactivo, (una muestra de arena tamizada) en otra sustancia neutra sin radiactividad (aserrín) con distintas proporciones de modo de obtener diferentes densidades. Por un lado, hemos medido el espectro y por otro, hemos obtenido mediante simulación la eficiencia de pico y la eficiencia total para cinco densidades distintas y ocho energías diferentes (son las que figuran en las tablas 7.7, 7.8 y 7.9) espaciadas a intervalos regulares de modo de cubrir el rango de energías normalmente utilizado. La actividad instantánea de un radioisótopo está dada por la expresión

$$a(t) = \lambda N(t) \tag{7.9}$$

es decir, la actividad es proporcional al número de núcleos radiactivos N(t) presentes en la muestra al tiempo t. Esto último, se cumple también para la actividad media en un tiempo T reemplazando en este caso N(t) por el número medio de núcleos que se desintegraron en dicho periodo de tiempo. Si el material radiactivo está uniformemente distribuido en la muestra, y  $\lambda \ll 1$  la actividad media (o la instantánea) será proporcional a la masa de dicho material. Es decir

$$\overline{a} = km \tag{7.10}$$

dónde  $\overline{a}$  es la actividad media, k es una constante de proporcionalidad y m es la masa del material radiactivo, en este caso arena. Si el material radiactivo está distribuido en otro material sin radiactividad, m se refiere a la masa de arena solamente, siendo la masa total la suma de la masa del material radiactivo más la masa del material no radiactivo. Si ahora tenemos dos cantidades diferentes  $m_1$  y  $m_2$  de un mismo material radiactivo disuelto en dos cantidades de material neutro sin radiactividad, sus densidades también serán diferentes. Por tanto, el cociente entre las actividades medias para las dos densidades será

$$\frac{\overline{a_1}}{\overline{a_2}} = \frac{km_1}{km_2} = \frac{m_1}{m_2}$$
(7.11)

Además, teniendo en cuenta la ecuación (5.34) o (7.5) la actividad media puede escribirse

$$\overline{a_1} = \frac{AreaFotopico_1}{\epsilon_1^P} \frac{1}{I} \frac{100}{T}$$
(7.12)

у

$$\overline{a_2} = \frac{AreaFotopico_2}{\epsilon_2^P} \frac{1}{I} \frac{100}{T}$$
(7.13)

de modo que podemos escribir la ecuación (7.11) como

$$C = \frac{\overline{a_1}}{\overline{a_2}} = \frac{AreaFotopico_1}{AreaFotopico_2} \frac{\epsilon_2^P}{\epsilon_1^P} = \frac{m_1}{m_2}$$
(7.14)

Las Tablas 7.10 y 7.11 y las figuras 7.40 y 7.41 contienen los valores del cociente C del primer miembro de la ecuación (7.14) para dos razones entre densidades (1,670/1,307) y (1,670/0,648) respectivamente. Las masas, fueron medidas con una balanza de 0.01 gramos de precisión.

| Relación entre densidades 1,670 $g/cm^3$ / 1,307 $g/cm^3$ |               |   |
|---|---------------|---|
| $m_1/m_2$   | Energía (keV) | $C = \frac{AreaFotopico_1}{AreaFotopico_2} \frac{\epsilon_2^P}{\epsilon_1^P}$ |
|   | 2614,53       | $1,4 \pm 0,1$   |
|   | 1764,49       | $1,4\pm0,3$   |
|   | 1460,83       | $1,3 \pm 0,2$   |
| $1,\!4580\pm0,\!0001$                                     | 1120,29       | $1,6\pm0,3$   |
|   | 911,20        | $1,\!52\pm0,\!08$   |
|   | 609,31        | $1,4 \pm 0,1$   |
|   | 351,93        | $1,52 \pm 0,09$   |
|   | 238,63        | $1,54 \pm 0,08$   |

Tabla 7.10: Valores del cociente  ${\cal C}$  para picos de distinta energía y para dos densidades distintas.



**Figura** 7.40: Valores de la relación C para picos de distinta energía y para la relación entre densidades (1,670/1,307).

| Relación entre densidades 1,670 $g/cm^3$ / 0,615 $g/cm$ |               |   |
|---|---------------|---|
| $m_1/m_2$   | Energía (keV) | $C = \frac{AreaFotopico_1}{AreaFotopico_2} \frac{\epsilon_2^P}{\epsilon_1^P}$ |
|   | 2614,53       | $3,9\pm0,7$   |
|   | 1764,49       | $4\pm1$   |
|   | 1460,83       | $3,9\pm0,6$   |
| $3,9994 \pm 0,0007$                                     | 1120,29       | $4\pm 1$  |
|   | 911,20        | $4,2 \pm 0,3$   |
|   | 609,31        | $3,6 \pm 0,4$   |
|   | 351,93        | $4,3\pm0,3$   |
|   | 238,63        | $4,2 \pm 0,2$   |

Tabla 7.11: Valores del cociente  ${\cal C}$  para picos de distinta energía y para dos densidades distintas.



**Figura** 7.41: Valores de la relación C para picos de distinta energía y para la relación entre densidades (1,670/0,648).

## Capítulo 8

# Comentarios, conclusiones y perspectivas futuras

#### 8.1. Comentarios

En esta tesis, hemos desarrollado una metodología basada en cálculos Monte Carlo para obtener la actividad de fuentes radiactivas de forma y tamaño variado sin el uso de muestras calibradas. La tesis se basa fundamentalmente en los resultados obtenidos con un detector de GeHP no obstante, los resultados son aplicables a un detector de NaI(Tl) también. En principio, el método es aplicable a cualquier detector siempre y cuando se tome la función resolución correctamente. Si bien, el método es implementado con muestras sólidas de suelo y a muestras ambientales, el mismo es válido para todo tipo de muestras sean sólidas, líquidas o gaseosas.

El hecho de poder simular la fuente con la misma forma composición y tamaño que la muestra a medir, es de suma importancia porque permite adecuar la forma de las muestras a las disponibilidades de cada laboratorio en particular, los cuales, no siempre están completamente equipados desde un principio. En los métodos tradicionales, se usan muestras calibradas que deben tener la misma forma, tamaño, composición y densidad que las muestras cuya actividad se quiere determinar. Este requisito, en muchas ocasiones no se cumple dado que las muestras a medir no se ajustan a las características de la muestra calibrada. Esto, es particularmente notable en el caso de muestras ambientales las cuales por su baja actividad suelen requerir volúmenes grandes y variados.

Las muestras calibradas, suelen ser costosas y difíciles de conseguir en algunos casos. Existen laboratorios especialmente equipados, que disponen de los detectores adecuados para medir actividades absolutas o fabricar muestras y fuentes radiactivas de determinadas características. Sin embargo, estas muestras además de ser costosas, en muchos casos deben ser operadas por personal autorizado o certificado para su transporte y manipulación. Las muestras en muchas ocasiones, deben adaptarse a las características y a las disponibilidades del laboratorio.

El método Monte Carlo como se muestra en esta tesis, también es importante porque permite estimar y obtener la forma del espectro espurio el cual, depende de cada fuente siendo distinto para cada muestra. Todo esto, sin prescindir del espectro medido por supuesto, el cual no puede ser obviado, y depende también del laboratorio y del instrumental usado, su ubicación etc. En ningún caso se puede obviar el espectro medido, dado que los cálculos se hacen a partir de éste y los resultados se obtienen mediante una comparación o ajuste del espectro calculado con el medido. En esta comparación, es indispensable tomar en cuenta los aspectos experimentales y que se consideren las líneas que aparecen en el espectro medido.

Si se tratara de una muestra gaseosa, como puede ser el caso de una muestra de aire de un determinado ambiente subterráneo por ejemplo, y se quiere determinar la concentración de radón en él, debe tomarse una muestra lo más grande posible y luego ésta debe ser ubicada dentro del blindaje. Es conveniente adecuar la forma de la muestra de modo tal que ocupe todo el volumen interior al mismo. En algunos casos la concentración de radón en aire de ambientes confinados puede alcanzar valores tan altos como  $1.0 \times 10^4$   $Bq/m^3$  o más, a presión ambiente. Puede ser complicado tener una muestra calibrada de estas características, sin embargo simular una tal fuente es muy sencillo. Este es un ejemplo más de la importancia de la simulación Monte Carlo en este tipo de aplicaciones.

Se obtuvo el espectro de simultaneidad teórico de una fuente pequeña de  ${}^{60}Co$  obtenido mediante cálculos Monte Carlo, y usando el método aquí desarrollado. El espectro fue obtenido simulando individualmente cada una de las líneas y luego empleando las ecuaciones desarrolladas en las sección 3.4.1 del Capítulo 3 y luego, fue comparado con el espectro medido obteniéndose una excelente coincidencia entre ambos.

Se utilizó para este fin una fuente de baja actividad de  ${}^{60}Co$  por tener este isótopo radiactivo un espectro binario consistente en tan solo dos líneas de energía gamma (1332,5 MeV y 1173,23 MeV) de intensidad muy similar(99,97 % y 99,98 %). Este hecho, es importante dado que permite estudiar el espectro de coincidencia sin la influencia de otras líneas.

Se analizó el espectro complejo de una muestra de arena con un contenido predominante de isótopos pertenecientes a la cadena del  $^{238}U$  donde pueden observarse más de medio centenar de líneas de energía. Se simularon las líneas con intensidad superiores al 1% y luego fueron ajustadas del modo señalado en el la sección 5.2 del Capítulo 5. Los resultados se muestran

en la Tabla 7.2 y en la Figura 7.19 como puede verse, estos muestran una excelente correlación entre la actividad obtenida con diferentes líneas de un mismo elemento  $(^{214}Bi \text{ y }^{214}Pb)$  y también, entre la actividad obtenida entre líneas de elementos distintos en equilibrio radiactivo.

Luego, se muestran los resultados obtenidos con una muestra de suelo con un contenido predominante de elementos de la cadena radiactiva del  $^{232}Th$  también en este caso, puede observarse una buena concordancia entre las actividades obtenidas con las diferentes líneas de un mismo elemento radiactivo y también, entre líneas de distintos isótopos en equilibrio radiactivo. Los resultados están asentados en las Figuras 7.25 y 7.26 y en la Tabla 7.3.

Se hizo una comparación entre los valores obtenidos para la actividad de un conjunto de tres muestras de suelo, aplicando el método aquí expuesto basado en simulación y el método tradicional usando fuentes calibradas del Laboratorio de Radiobiología de la Central Nuclear de Embalse de Río III. Los resultados, se muestran en la Tabla 7.4 y en las Figuras 7.27, 7.28 y 7.29. Podemos observar que la coincidencia en general es buena salvo, algunos casos donde existe una diferencia de alrededor del 13%. Estas diferencias, sin embargo son normales en ejercicios de intercomparación y pueden atribuirse a diferencias de densidad y composición entre la simulación y la muestra patrón. Pese a estas diferencias, podemos considerar que el acuerdo entre ambos métodos es bueno.

Se hizo un estudio y cálculo de los efectos de la densidad en la determinación de la actividad de una muestra. Es decir, se hizo un estudio de la variación de las eficiencias de pico y eficiencias totales en función de la densidad de la muestra y la energía de los fotones. Esto fue realizado, mezclando una cierta porción de arena finamente tamizada $(1mm \times 1mm)$  con distintas cantidades de aserrín muy liviano y sin contenido radiactivo. De este modo, se obtuvieron las distintas densidades. El resultado permite obtener la eficiencia de pico para una determinada muestra dentro del rango 0,4 y 1,67 g/cm sin necesidad de calcular las eficiencias de todas las líneas intervinientes en el espectro cada vez. Los resultados se muestran en las Figuras 7.36 a 7.40 y en las Tablas 7.7, 7.8 y 7.9.

Se definió y calculó un coeficiente C que vincula el número de cuentas de los fotopicos (*AreaFotopico*) y las eficiencias de pico  $\epsilon^P$  con la relación entre las masas de un material radiactivo distribuido uniformemente en dos matrices con densidades distintas. El coeficiente C permite relacionar magnitudes medidas con el detector, y magnitudes obtenidas mediante cálculos Monte Carlo con las masas del material radiactivo medidas con una balanza electrónica con una precisión de 0.01 g. Los resultados se muestran en la Tablas 7.10 y 7.11 y en las figuras 7.41 y 7.42.

#### 8.2. Conclusiones

Por las razones expuestas anteriormente, podemos concluir lo siguiente:

- Hemos investigado y desarrollado un método adecuado para el análisis y el cálculo de espectros gamma complejos de muestras variadas de suelo o similares, con un detector de GeHP aún a niveles muy bajos de actividad. Su implementación, permite independizarse del uso de muestras calibradas lo cual, es un problema difícil de resolver en algunos casos.
- 2) Puede ser extendido y aplicado al estudio de espectros realizados con otros detectores ya sea de alta resolución o de baja resolución. El método en principio, es aplicable a cualquier detector y a rangos de energía menores o mayores al aquí estudiado siempre que se tome la función resolución correctamente y la simulación se ajuste estrechamente a las condiciones experimentales.
- El método puede ser aplicado a muestras sólidas, líquidas o gaseosas de diversas formas y tamaños.
- 4) Permite adecuar las muestras a las necesidades y presupuesto de cada laboratorio.
- 5) Por lo general, no requiere de simulaciones demasiado pesadas y pueden ser realizadas en un ordenador común de escritorio.
- 6) Permite obtener el espectro espurio el cuál no puede obtenerse de manera experimental.
- 7) Permite obtener el espectro de coincidencia total es decir, el pico suma con el correspondiente compton de simultaneidad. El cual, tampoco puede ser obtenido de manera experimental.
- 8) El método permite el análisis y cálculo de espectros complejos como lo son por ejemplo, las muestras de suelo y permite detectar la presencia de lineas ocultas o entremezcladas y calcular sus actividades.
- 9) La concordancia entre los valores de la actividad obtenida con distintas líneas de un mismo elemento o con líneas de distintos isótopos en equilibrio radiactivo, son muy buenas y están dentro del error.
- 10) Se hizo un ejercicio de intercomparación entre nuestro Laboratorio de Radiaciones Nucleares y Radiactividad Ambiental y el Laboratorio de

Radiobiología de La Central Nuclear de Embalse. Se compararon los valores de la actividad obtenidos empleando el método de simulación aquí expuesto y usando muestras calibradas. Los resultados son aceptables teniendo en cuenta que intervinieron solo dos laboratorios en la inter-comparación.

- 11) Se hizo un estudio de los efectos de la densidad de la muestra en la determinación de la actividad y se obtuvieron mediante simulación los valores de las eficiencias de pico y las eficiencias totales para distintas energías y densidades. Con estos valores, se realizó un ajuste y se obtuvo la eficiencia de pico en función de la energía y la densidad.
- 12) Se calculó y definió un coeficiente C que relaciona magnitudes medidas con el detector con las obtenidas mediante simulación y las masas del material radiactivo medidas con una balanza electrónica.
- 13) El método puede ser automatizado para permitir mayor velocidad de cálculo y de ajuste de los espectros.

#### 8.3. Perspectivas Futuras

Debido a la baja actividad de las muestras ambientales, el tiempo requerido para formar un espectro gamma bien definido, puede ser de varias horas o días. Para esto, es necesario mantener el equipo funcionando de manera continua durante varias horas, días o semanas sin recargar nitrógeno y a continuación, hacer una medición del fondo durante un número igual de horas. A menudo, no es posible hacer mediciones tan largas dado que el nitrógeno debe ser recargado cada siete días como máximo, y a veces, por diversos motivos no es posible la recarga inmediata, debiéndose interrumpir el proceso de medición. Por este motivo, es de importancia contar con un equipo enfriador híbrido que permita operar el detector de manera ininterrumpida durante varios días o semanas. Los enfriadores híbridos son dispositivos que permiten mantener el contenido de nitrógeno líquido que refrigera el detector, durante varios meses. Dicho instrumento, ya fue adquirido mediante la asignación de un proyecto (Proyecto PRIMAR 2017-2021) la compra de tal instrumento y su llegada ya se concretaron y está en proceso de armado siendo su pueta en funcionamiento inminente.

Para detectar y medir niveles muy bajos de radiactividad, además es necesario contar con buen blindaje que permita aislar las radiaciones provenientes de la muestra de aquellas provenientes del ambiente que rodea el detector. Algunos laboratorios, cuentan incluso con blindajes especialmente diseñados con materiales fundidos antes de las explosiones nucleares para evitar la presencia de isótopos contaminantes en los materiales que rodean el detector. También existen y están disponibles en el mercado, blindajes especialmente diseñados para cada detector. Este es otro de los puntos importantes a tener en cuenta a los efectos de mejorar la precisión y alcance de las mediciones.

Otro de los trabajos previstos es completar la sub-rutina para simular partículas correlacionadas e implementarla en la simulación para obtener el espectro de simultaneidad y aplicarlo a algunos decaimientos a los efectos de obtener los coeficientes de corrección. Esto ya se comenzó a hacer en esta tesis para el caso del  $^{60}Co$  y es la idea extenderlo a otros elementos como el  $^{214}Pb$  por ejemplo.

La implementación del reciclador híbrido combinado con la disminución del fondo de ambiente, podría permitir hacer mediciones de radón en el aire de ambientes confinados por ejemplo. Los ambientes cerrados como sótanos, subsuelos, cuevas, baños termales, y viviendas cerradas en épocas invernales etc pueden contener niveles de radón muy elevados que pueden alcanzar los  $1,0\times10^4~Bq/m^3$ o más. Con la implementación de estos elementos podría llegar a medirse valores de concentración de radón tan bajos como 5 o 10 $Bq/m^3$ . Esto podría hacerse directamente ubicando la muestra de aire directamente rodeando el detector. Es importante que la muestra sea lo más grande posible.

Entre los proyectos futuros también, podemos mencionar la determinación de radiactividad en aire a través de la medición emisión gamma desde aerosoles atmosféricos retenidos en filtros. Entre los elementos radiactivos encontrados en el aire están el  ${}^{90}Sr$  y el  ${}^{137}Cs$  con tiempos de semidesintegración de 28 y 30 años respectivamente. Dichos elementos, fueron arrojados a la atmosfera en los ensayos nucleares llevados a cabo en las décadas del 50 y 60. Como son elementos sólidos en su mayoría, una vez en el aire se adhieren a los aerosoles atmosféricos y son trasnportados por el efecto de los vientos hacia la alta atmósfera y desde allí, se distribuyen por todo el planeta. Luego, por efecto de los vientos son nuevamente transportados hacia las capas más bajas de la atmosfera desde donde, por efecto de las lluvias, pueden ser depositados en el suelo y sobre las plantas. Esta deposición, puede ocurrir aún en lugares muy distantes del lugar donde fueron producidos. Además de los elementos mencionados, también pueden encontrarse en el aire otros átomos radiactivos como el <sup>7</sup>Be, el <sup>10</sup>Be el <sup>14</sup>C etc. El <sup>7</sup>Be es producido por la interacción de protones de la radiación cósmica con átomos del aire en la parte alta de la atmósfera. Debido a su origen el  $^7Be$  es usado como trazador en procesos de intercambio vertical en la atmósfera.

Entre los trabajos futuros planificados se encuentra un estudio sobre la emanación o de-absorción de radón desde un grano cristalino de suelo. El  $^{226}Ra$  es un elemento sólido que se encuentra en el suelo formando parte de la red cristalina de los granos de suelo. El  $^{226}Ra$  también, es un isótopo radiactivo que decae en  $^{222}Rn$  emitiendo una partícula alfa de 5 MeV aproximadamente.

Tras la emisión de la partícula alfa, el átomo residual de  $^{222}Rn$  reordena sus electrones y por tener sus capas electrónicas completas por ser un gas noble puede desplazarse del sitio que ocupa en la red y moverse varias capas atómicas a través de ella por el impulso propinado por la partícula alfa. Si la dirección del movimiento, es hacia la superficie del grano, y la distancia hacia ella no es demasiado grande, el átomo, puede eventualmente escapar de la superficie hacia el aire o el agua que rodean el grano. Una vez allí, si el medio que rodea el grano es aire, se termaliza por colisiones con los átomos del aire y puede difundirse a través de éste hacia la atmosfera siguiendo la ley de Fick o hacia el interior de viviendas a través de grietas. Este proceso, es el principal mecanismo de migración del <sup>222</sup>Rn hacia el aire.

Si el medio que rodea el grano es agua, el átomo de radón se disuelve en ésta y puede permanecer allí hasta su desintegración. Este proceso se espera que sea más importante a grandes profundidades donde la presión del radón puede ser muy grande.

El análisis anterior, da fundamento al estudio de concentración de radón en aguas de perforación profundas donde la concentración de este isótopo es mayor. En algunas poblaciones, el agua de consumo proviene de perforaciones profundas (300 m o 400 m) y es suministrada directamente a través de la cañería en las viviendas. Este encapsulamiento, dentro de la cañería no permite el escape del gas desde el agua y llega de este modo a las viviendas. Este trabajo, ya comenzó a realizarse dando también muy buenos resultados.

Entre los trabajos planificados también, podemos citar la realización de un software para automatizar el ajuste de los espectros y agilizar los cálculos. Esto también ya comenzó a hacerse.

Cada uno de los proyectos anteriormente citados representa un desafío no imposible de lograr.

Comentarios, Conclusiones y Perpectivas Futuras

## Capítulo 9

## Apéndice

### 9.1. Desintegración de Series Radiactivas, Equilibrio Radiactivo y Ecuaciones de Bateman

En esta sección, trataremos la desintegración de series radiactivas y analizaremos las condiciones de equilibrio. Normalmente en la bibliografía se da la solución de una cadena radiactiva de a lo sumo tres o cuatro elementos y con poblaciones iniciales nulas. En esta sección, tratamos la solución general de las ecuaciones de Bateman para el caso de una cadena de n elementos radiactivos con condiciones iniciales distintas de cero. El conjunto de ecuaciones que describen el decaimiento de una cadena de n elementos radiactivos es:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1$$
$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2$$

(9.1)

$$\frac{dN_n}{dt} = \lambda_{n-1}N_{n-1} - \lambda_n N_n$$

La solución general de este sistema de ecuaciones diferenciales fue obtenida

originalmente por el matemático inglés Harry Bateman [85][25][86] motivo por el cual, llevan su nombre. En estas ecuaciones  $N_k = N_k(t)$  es el número promedio de núcleos del elemento k al tiempo t y  $\lambda_k$  es la constante de desintegración respectiva. En principio, supondremos que la cantidad de núcleos del isótopo k al tiempo inicial t = 0 es distinta de cero para todos o algunos de los elementos y que  $\lambda_i \neq \lambda_j$  para todo par de i, j. Tomando la transformada de Laplace en cada miembro de las ecuaciones (9.1) e integrando por partes en el primer miembro, obtenemos para la k-ésima ecuación

$$\int_{0}^{\infty} e^{-st} \frac{dN_{k}}{dt} dt = -N_{k0} + s \int_{0}^{\infty} e^{-st} N_{k}(t) dt =$$
$$= \lambda_{k-1} \int_{0}^{\infty} e^{-st} N_{k-1}(t) dt - \lambda_{k} \int_{0}^{\infty} e^{-st} N_{k}(t) dt$$
(9.2)

De aquí obtenemos el siguiente conjunto de ecuaciones algebráicas

$$-N_{10} + s\widetilde{N}_1(s) = -\lambda_1\widetilde{N}_1(s) \quad para \quad k = 1$$
(9.3)

у

$$-N_{k0} + s\widetilde{N}_k(s) = \lambda_{k-1}\widetilde{N}_{k-1}(s) - \lambda_k\widetilde{N}_k(s) \quad para \quad k = 2, 3..., n \quad (9.4)$$

donde  $\widetilde{N}_k(s)$  es la transformada de Laplace de  $N_k(t)$  dada por

$$\widetilde{N}_k(s) = \int_0^\infty e^{-st} N_k(t) dt \tag{9.5}$$

Podemos reescribir el conjunto de ecuaciones (9.3) y (9.4) de manera explícita

•

$$-N_{10} + s\widetilde{N}_1(s) = -\lambda_1 \widetilde{N}_1(s)$$
$$-N_{20} + s\widetilde{N}_2(s) = \lambda_1 \widetilde{N}_1(s) - \lambda_2 \widetilde{N}_2(s)$$
$$. \tag{9.6}$$

$$-N_{n0} + s\widetilde{N}_n(s) = \lambda_{n-1}\widetilde{N}_{n-1}(s) - \lambda_n\widetilde{N}_n(s)$$

.

despejando de estas obtenemos el siguiente conjunto de ecuaciones

$$\widetilde{N}_1(s) = \frac{N_{10}}{\lambda_1 + s}$$
$$\widetilde{N}_2(s) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 + 1} \widetilde{N}_1(s) + \frac{N_{20}}{\lambda_2 + s}$$
$$\widetilde{N}_3(s) = \frac{\lambda_2}{\lambda_3 + s} \widetilde{N}_2(s) + \frac{N_{30}}{\lambda_3 + s}$$

•

$$\widetilde{N}_n(s) = \frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_n + s} \widetilde{N}_{n-1}(s) + \frac{N_{n0}}{\lambda_n + s}$$

Reemplazando  $N_1$  en la segunda ecuación por el valor dado en la primera y luego reemplazando en la tercera  $N_2$  por el valor dado en la segunda y así sucesivamente, se obtiene una expresión para la n-ésima trasformada de Laplace en término de los parámetros iniciales.

$$\widetilde{N}_n(s) = \sum_{m=1}^{n-1} N_{m0} \left( \prod_{q=m}^{n-1} \lambda_q \right) \frac{1}{\left[ \prod_{j=m}^n (\lambda_j + s) \right]} + \frac{N_{n0}}{(\lambda_n + s)}$$
(9.8)

Tomando ahora la transformada inversa de Laplace en ambos miembros de las ecuaciones anteriores se obtiene la expresión para el número medio de núcleos del elemento n

$$N_n(t) = \frac{1}{2\pi i} \int_{\gamma-i\infty}^{\gamma+i\infty} e^{st} \widetilde{N}_n(s) \, ds = \sum_{m=1}^{n-1} \frac{1}{2\pi i} \int_{\gamma-i\infty}^{\gamma+i\infty} F_m(s) e^{st} ds + \frac{1}{2\pi i} \int_{\gamma-i\infty}^{\gamma+i\infty} \frac{N_{n0}}{(\lambda_n+s)} e^{st} ds$$
(9.9)

donde hemos definido

$$F_m(s) = N_{m0} \left(\prod_{q=m}^{n-1} \lambda_q\right) \frac{1}{\left[\prod_{j=m}^n (\lambda_j + s)\right]}$$
(9.10)

Las constantes  $\gamma$  son elegidas de modo que todas las singularidades de  $N_n$  estén del lado negativo, en nuestro caso, todas las singularidades son negativas y son polos simples. La integral puede ser cerrada por tanto mediante un semicírculo infinito sobre la mitad izquierda del plano complejo. Debido a que todas las transformadas  $\tilde{N}_k(s)$  son de la forma P/Q(s) donde P son constantes y Q(s) son polinomios de grado  $\geq 1$  de modo que la integral a lo largo del semicírculo tiende a cero cuando el radio tiende a infinito. Luego por el teorema de los residuos podemos escribir

$$N_n(t) = \sum_{m=1}^{n-1} \frac{1}{2\pi i} \oint F_m(s) e^{st} ds + \frac{1}{2\pi i} \oint \frac{N_{n0}}{(\lambda_n + s)} e^{st} ds$$
(9.11)

$$\frac{1}{2\pi i} \oint F_m(s) e^{st} ds = \sum_{j=m}^n \operatorname{Re}\left(s_j \left[F_m(s) e^{st}\right]\right) = \sum_{j=m}^n \lim_{s \to -\lambda_j} \left(s + \lambda_j\right) F_m(s) e^{st}$$
(9.12)

La integral del segundo término en la ecuación anterior es igual a

$$\frac{1}{2\pi i} \oint \frac{N_{n0}}{(\lambda_n + s)} e^{st} ds = N_{n0} \exp^{-\lambda_n t}$$
(9.13)

Mientras que cada una de las integrales de la sumatoria del primer término

puede escribirse:

$$\frac{1}{2\pi i} \oint F_m(s) e^{st} ds = \sum_{j=m}^n \operatorname{Res}_j \left( \left[ F_m(s) e^{st} \right] \right) = \sum_{j=m}^n \operatorname{Lim}_{s \to -\lambda_j}(s + \lambda_j) F_m(s) \exp(st)$$
(9.14)

a su vez

$$\sum_{j=m}^{n} \lim_{s \to -\lambda_j} \left(s + \lambda_j\right) F_m(s) e^{st} = \sum_{j=m}^{n} N_{m0} \left(\prod_{q=m}^{n-1} \lambda_q\right) \frac{e^{-\lambda_j t}}{\left[\prod_{\substack{k=m\\k \neq j}}^{n} \left(\lambda_k - \lambda_j\right)\right]} \quad (9.15)$$

Por consiguiente la expresión para la solución más general de Nn (t) es:

$$N_n(t) = \sum_{m=1}^{n-1} N_{m0} \left( \prod_{q=m}^{n-1} \lambda_q \right) \sum_{j=m}^n \frac{e^{-\lambda_j t}}{\left[ \prod_{\substack{k=m\\k \neq j}}^n (\lambda_k - \lambda_j) \right]} + N_{n0} e^{-\lambda_n t}$$
(9.16)

La actividad del k-ésimo elemento se define como  $\lambda_k N_k$  y representa la cantidad de núcleos presentes en la muestra que se desintegraron en la unidad de tiempo y por consiguiente, no deben tenerse en cuenta los núcleos que se formaron en el mismo intervalo de tiempo. Por este motivo, la actividad no debe tomarse como la derivada total de N respecto del tiempo.

Una situación particularmente importante, es aquella para el cual el tiempo de vida media del primer elemento es mayor que el de sus descendientes en este caso, después de un tiempo suficientemente grande las actividades de cada uno de los integrantes de la serie se igualan a la de su progenitor. Tal condición, se denomina equilibrio radiactivo y sirve para calcular la actividad de un elemento que no tiene líneas de emisión medibles a partir de la actividad de algunos de los descendientes integrantes de la cadena en equilibrio radiactivo con él.

Apéndice

## Bibliografía

- K. J. Moody, N. Gharibyan, P. M. Grant, D. A. Shaughnessy, J. D. Despotopulos, S. J. Tumey, and T. A. Brown. Decay of <sup>58</sup>Co<sup>m</sup>. Phys. Rev. C, 99:034–307, Mar 2019.
- [2] V. Foteinou, S. Harissopulos, M. Axiotis, A. Lagoyannis, G. Provatas, A. Spyrou, G. Perdikakis, Ch. Zarkadas, and P. Demetriou. Cross section measurements of proton capture reactions on se isotopes relevant to the astrophysical p process. *Phys. Rev. C*, 97:035806, Mar 2018.
- [3] E. Lunderberg, A. Gade, V. Bader, and T. Bauger. In-beam gamma ray spectroscopy of <sup>38-42</sup>s. PHYSICAL REVIEW C 94, 064327 (2016), 2016.
- [4] R. Longland, C. Illiadis, A. E. Champagne, and J. R. Newton. Nuclear astrophysics studies at the lena facilities: The gamma ray detection system. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 546:452-464, 2006.
- [5] Cacciolli, Agostino, and Bemerer. Ultra-sensitive in-beam  $\gamma ray$  spectroscopy for nuclear astrophysics at luna. *Eur. Phys. J. A*, 39:179–186, 2009.
- [6] D. Weisshaar, D. Bazin, P.C. Bender, C.M. Campbell, F. Recchia, V. Bader, T. Baugher, J. Belarge, M.P. Carpenter, H.L. Crawford, M. Cromaz, B. Elman, P. Fallon, A. Forney, A. Gade, J. Harker, N. Kobayashi, C. Langer, T. Lauritsen, I.Y. Lee, A. Lemasson, B. Longfellow, E. Lunderberg, A.O. Macchiavelli, K. Miki, S. Momiyama, S. Noji, D.C. Radford, M. Scott, J. Sethi, S.R. Stroberg, C. Sullivan, R. Titus, A. Wiens, S. Williams, K. Wimmer, and S. Zhu. The performance of the γ-ray tracking array gretina for γ -ray spectroscopy with fast beams of rare isotopes. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 847:187 – 198, 2017.

- [7] B. Bucher, M. S. Snow, E. S. Cárdenas, K. P. Carney, M. R. Finck, J. J. Horkley, M. T. Kinlaw, E. M. May, J. K. Pfeiffer, and J. L. Ward. Revision of forensics-relevant nuclear data in <sup>127</sup>Sbβ decay. *Phys. Rev. C*, 99:034314, Mar 2019.
- [8] I-Yang Lee, M A Deleplanque, and Kai Vetter. Developments in large gamma-ray detector arrays. *Reports on Progress in Physics*, 66:1095, 05 2003.
- [9] S. Paschalis, I.Y. Lee, A.O. Macchiavelli, C.M. Campbell, M. Cromaz, S. Gros, J. Pavan, J. Qian, R.M. Clark, H.L. Crawford, D. Doering, P. Fallon, C. Lionberger, T. Loew, M. Petri, T. Stezelberger, S. Zimmermann, D.C. Radford, K. Lagergren, D. Weisshaar, R. Winkler, T. Glasmacher, J.T. Anderson, and C.W. Beausang. The performance of the gamma-ray energy tracking in-beam nuclear array gretina. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 709:44 – 55, 2013.
- [10] J. Eberth and J. Simpson. From ge(li) detectors to gamma-ray tracking arrays 50 years of gamma spectroscopy with germanium detectors. *Progress in Particle and Nuclear Physics*, 60:283–337, 2008.
- [11] Simpson J. The euroball spectrometer. Zeitschrift f
  ür Physik A Hadrons and Nuclei, 358(2):139–143, Feb 1997.
- [12] Berkeley Lab. http://greta.lbl.gov/.
- [13] Berkeley Lab. https://newscenter.lbl.gov/2018/11/07/greta-bettergamma-ray-detector/.
- [14] G. de Angelis, A. Bracco, and D. Curien. The euroball gamma ray detector. *Europhysics News*, 34:181–185, 2003.
- [15] C.G. Bruno, M. Aliotta, P. Descouvemont, A. Best, T. Davinson, D. Bemmerer, A. Boeltzig, C. Broggini, A. Caciolli, F. Cavanna, T. Chillery, G.F. Ciani, P. Corvisiero, R. Depalo, A. Di Leva, Z. Elekes, F. Ferraro, A. Formicola, Zs. Fulop, G. Gervino, A. Guglielmetti, C. Gustavino, Gy. Gyurky, G. Imbriani, M. Junker, M. Lugaro, P. Marigo, R. Menegazzo, V. Mossa, F.R. Pantaleo, D. Piatti, P. Prati, K. Stockel, O. Straniero, F. Strieder, T. Szucs, M.P. Takacs, and D. Trezzi. Improved astrophysical rate for the <sup>18</sup>O (p, α)<sup>15</sup> N reaction by underground measurements. *Physics Letters B*, 790:237 – 242, 2019.
- [16] C. Broggini, D. Bemmerer, A. Caciolli, and D. Trezzi. Luna: Status and prospects. *Progress in Particle and Nuclear Physics*, 98:55 – 84, 2018.

- [17] Heusser G. Low-radioactivity background techniques. Annual Review of Nuclear and Particle Science, 45(1):543–590, 1995.
- [18] J. Arnold and H. AL-Salih. Berylium-7 produced by cosmic ray. Science, 121:451 – 453, 1955.
- [19] P.G. Appleby and G.T. Piliposian. Efficiency corrections for variable sample height in well-type germanium gamma detectors. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 225(3):423 – 433, 2004.
- [20] G.I Knoll. Radiation Detection and Measuretment. John Wiley and Sons, U.S.A., 1979.
- [21] N. Tsoulfanidis. Introduction Radiation Measuretments. m, 1999.
- [22] M.J. Berger and S.M. Seltzer. Response functions for sodium iodide scintillation detectors. *Nuclear Instruments and Methods*, 104(2):317 – 332, 1972.
- [23] Hu-Xia Shi, Bo-Xian Chen, Ti-Zhu Li, and Di Yun. Precise monte carlo simulation of gamma-ray response functions for an nai(tl) detector. *Applied Radiation and Isotopes*, 57(4):517 – 524, 2002.
- [24] Gonzalez Enrique R. Solucion general de las ecuaciones de bateman y estudio de condiciones de equilibrio en cadenas radiactivas. Reunion de Fisica de Argentina - Tandi-Bs.As. 2014 - http://rafa.fisica.org.ar/wpcontent/uploads/2018/10/AFA-2014-Libro-resumenes-final.pdf, 2014.
- [25] Dobromir Pressyanov. Short solution of radioactive decay chain equations. American Journal of Physics, 70:444–445, 04 2002.
- [26] K. Hoffman and R. Kunze. Algebra Lineal. Prentice Hall Internacional, 1976.
- [27] Landau L. D. and Lifshitz E. M. Quantum Electrodynamics. Pergamon Press, 1982.
- [28] H. Staub, H. Bethe, and J. Ashkin. Experimental Nuclear Physics. John Wiley and Sons, 1960.
- [29] Schiff L. I. Quantum Mechanics. McGraw-Hill, New York, 1949.
- [30] Mandl F. and Shaw G. Quantum Field Theory. John Wiley and Sons, 1984.

- [31] Anderson David W. Absorption of Ionizing Radiation. University Park Press, 1984.
- [32] Kittel C. Introduction to Solid State Physics. John Wiley and Sons, New York, 1966.
- [33] Heitler W. The Quantum Theory of Radiation. Oxford University Press, 1954.
- [34] W. E. Burcham. *Fisica Nuclear*. Editorial Reverte, 1974.
- [35] Anderson Carl D. The positive electron. *Physical Review*, 43:491–498, 1933.
- [36] Bethe H. On the annihilation of positron. Proceeding of the Royal Society A, 150:129–141, 1935.
- [37] Kleinert H. Particles and Quantum Fields. World Scientific, 1992.
- [38] J.M. Blatt and V. F. Weisskoff. *Theorical Nuclear Physics*. John Wiley and Sons, New York, 1963.
- [39] F. Salvat and J. M. Fenandez-Varea. PENELOPE A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. Nuclear Energy Agency, 2008.
- [40] Compton A. H. A quantum theory of the scattering of x-rays by light elements. *Physical Review*, 21(5):483–502, 1923.
- [41] Bethe Hans. A. and Ashkin Julius. Pasagge of Radiations Through Matter - Part II. John Wiley and Sons, 1960.
- [42] Kurucu Y., Demir L., and Sahin Y. Incoherent scattering functions of 59.5 kev gamma rays by ti, ni,zr,in, au and pb. *Physica Scripta*, 59:118–121, 1999.
- [43] Marc Decombaz, Jean-Jacques Grostely, and Jean-Pascal Laedermann. Coincidence surnrning corrections for extended sources in gamma-ray spectrometry using monte carlo simulation. Nuclear Instruments and Methods A, 312:152–159, 1992.
- [44] D. Arnold and O. Sima. Coincidence-summing in gamma-ray spectrometry by excitation of matrix x-rays. *Applied Radiation and Isotopes*, 52:725 732, 2000.

- [45] Klaus Debertin and Ulrich Schotzig. Coincidence summing corrections in ge(li)-spectrometry at low source-to-detector distances. Nuclear Instruments and Methods, 158:471 – 477, 1979.
- [46] Los Alamos National Laboratory. A General Monte Carlo N-Particle (MCNP) Transport Code. https://laws.lanl.gov/vhosts/mcnp.lanl.gov/mcnp5.shtml, 2010.
- [47] Gonzalez Enrique R. Efectos de simultaneidad en espectrometria gamma. Simulacion del espectro de coincidencia. 100 Reunion de Fisica de Argentina - Merlo - Prov. de San Luis - 2015 - http://rafa.fisica.org.ar/wp-content/uploads/2018/10/AFA-2015- Libro- resumenes- final3.pdf, 2015.
- [48] K. Blumm. Density Matrix Theory and Applications. Plenium Press, New York, 1981.
- [49] Rose M. E. Elementary Theory of Angular Momentum. John Wiley and Sons, New York, 1957.
- [50] Kenneth S. Krane. Introductory Nuclear Physics. Wiley, 1987.
- [51] L. C. Biedenharn and M. E. Rose. Theory of angular correlation of nuclear radiations. *Review of Modern Physics*, 25(3):729–777, 1953.
- [52] Miguel Roteta and Eduardo Garcia-Torano. An evaluation of the influence of y-y angular correlation on the coincidence-summing corrections in y-ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods A*, 369:665–670, 1996.
- [53] E. L. Brady and M. Deutsch. Angular correlation of successive gammarays. *Physical Review*, 78(a):558, 1950.
- [54] Brink D. M. and Satchler G. R. Angular Momentum. Oxford University Press, 1968.
- [55] D.A. Varshalovich. Quantum Theory Of Angular Momentum. World Scientific, 1988.
- [56] O. Sima and D. Arnold. On the monte carlo simulation of HPGe gamma spectrometry systems. *Applied Radiation and Isotopes*, 67:701 705, 2009.
- [57] O. Sima. Applications of monte carlo calculations to gammaspectrometric measurements of environmental samples. Applied Radiation and Isotopes, 47(9-10):919–923, 1996. cited By 27.

- [58] O. Sima and D.Arnoldl. Self-attenuation and coincidence sumiming corections calculated by monte carlo simulations for gamma spectrometry measuretments with well-type germanium detectors. Appl Radiat. Isot., 47(9):889 – 893, 1996.
- [59] O. Sima, I.L. Cazan, L. Dinescu, and D. Arnold. Efficiency calibration of high volume samples using the gespecor software. *Nuclear Instruments* and Methods A, 61:123–127, 2004.
- [60] M. Korun and R. Martincic. Coincidence summing in gamma and xray spectrometry. Nuclear Instruments and Methods A, 325:478 – 484, 1993.
- [61] Bergona Quintana and Francisco Fernandez. An empirical method to determine coincidence-summing corrections in gamma spectrometry. *Appl. Radiat. lsot.*, 46:961–964, 1995.
- [62] Octavian Sima and Dirk Arnold. Accurate computation of coincidence summing corrections in low level gamma ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 53:51–56, 2000.
- [63] O. Sima and C. Dovlete. Matrix effects in the activity measurement of environmental samples - implementation of specific corrections in a gamma-ray spectrometry analysis program. *Applied Radiation and Isotopes*, 48(1):59–69, 1997. cited By 60.
- [64] O. Sima. Applications of monte carlo calculations to gamma spectrometric measurements of environmental samples. Appl Radiat. Isot., 47(9):919 – 923, 1996.
- [65] XCOM-Photon Cross Sections. https://physics.nist.gov.
- [66] G. J. McCallum and G. E. Coote. Influence of source-detector distance on relative intensity and angular correlation measurements with ge(li) spectrometers. *Nuclear Instruments and Methods*, 130:189 – 197, 1975.
- [67] Thomas M. Semkow, Ghazala Mehmood, Pravin P. Parekh, and Mark Virgil. Coincidence summing in gamma-ray spectroscopy. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 290(2):437 – 444, 1990.
- [68] Dusan Novkovic, Aleksandar Kandic, Mirjana Duvasevic, Ivana Vukanac, Zoran Milosevic, and Laslo Nadderd. Coincidence summing of x-

and gamma-rays in gamma-ray spectrometry. Nuclear Instruments and Methods A, 578:207 – 217, 2007.

- [69] Laslo j. Nadderd, Dragana J. Jordanov, and Milos D. Davidovic. A new matrix method for calculating coincidence summing effects for gamma spectroscopy. *Nuclear Instruments and Methods A*, 662:21 – 25, 2012.
- [70] A. Hamzawy. Validation of analytical formula for the efficiency calibration of gamma detectors using coaxial and off-axis extended sources. *Nuclear Instruments and Methods A*, 618:216–222, 2010.
- [71] Julio C. Aguiar. An analitical calculation of the peak efficiency for cilindrical sources perpendicular to the detector axis in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 66:1123–1127, 2008.
- [72] Mainardi R. T., Gonzalez E. R., and Bonzi E. V. Calculos monte carlo y analiticos de la radiacion emitida por una muestra radiactiva cilindrica. ANALES AFA, 18:217–225, 2017.
- [73] Enrique R. Gonzalez and Edgardo V. Bonzi. Calculation of radioctive spectrum of environmental samples by monte carlo code penelope. *Anales de Fisica*, 22:347–353, 2010.
- [74] Pablo C. Ortiz-Ramirez. Development of an absolute method for efficiency calibration of a coaxial hpge detector for large volume sources. *Nuclear Instruments and Methods A*, 793:49–56, 2015.
- [75] Selim Y. S., Abbas M., and Fawzy M. A. Analitical calculation of the efficiencies of gamma scintillators part 1: total efficiency for coaxial disk sources. *Radiation Physics and Chemistry*, 53:589–592, 1998.
- [76] S. Hurtado, M. Garcia Leon, and R. Garcia Tenorio. Geant4 code for simulation of a germanium gamma ray detector and its application to efficiency calibration. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 518 (2004) 764â774*, 518:764 – 774, 2004.
- [77] Gonzalez Enrique R., Mainardi Raul T., Grad Gabriela B., and Bonzi Edgardo V. A methodology to determine natural radioactivity by gamma spectrometry without using calibrated standard samples. *Applied Radiation and Isotopes*, 125:48–52, 2017.
- [78] Fano U. Degradation and range straggling of high-energy radiations. *Physical Review*, 97:328–349, 1953.

- [79] Bousselham A., H. Barrett, Bora B, and Shah K. Photoelectron anticorrelations and sub-poisson statistics in scintillation detectors. *Nuclear Instruments and Methods A*, 620:359–362, 2010.
- [80] E. Browne and R.B. Firestone. *Table of Radiactive Isotopes*. John Wiley and Sons, New York.
- [81] S. Chu, L. Ekstrom, and R.B. Firestone. http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/ The Lund/LBNL Nuclear Data Search. 1999.
- [82] Quindos L. S., Fernandez P. L., Soto J., and Gomez M. Results of Second Intercomparison of gamma Spectrometry Measurements of Radiactivity in Soils and Buildings Materials. University of Cantabria - Spain-ISBN 84-8102-095-8, 1995.
- [83] M.C Perillo Isaac, D Hurley, R.J McDonald, E.B Norman, and A.R Smith. A natural calibration source for determining germanium detector efficiencies. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 397(2):310 – 316, 1997.
- [84] Gonzalez Enrique R., Grad Gabriela B., and Bonzi Edgardo V. Influence of the sample in density in gamma spectrometry. *Applied Radiation* and Isotopes, 152:86–90, 2019.
- [85] H. Bateman. The solution of a system of differential equations occurring in the theory of radio-active transformations. *Proc. Cambridge Phil. Soc.*, 1908, 15:423–427, 1908.
- [86] Keman W. Yuang D. Explicit solutions for exit-only radiactive decay chains. *Journal of Applied Physics*, 101-094907, 2007.

# Índice de figuras

| 1.1. | Detector GAMMASPHERE en el Lawrence Berkeley National<br>Laboratory[11]  | 2      |
|------|--|--------|
| 1.2. | Figura del Detector GRETA[12]  | 3      |
| 1.3. | Figura del Detector de rayos gamma EUROBALL[14] $\ . \ . \ .$ .  | 4      |
| 1.4. | Espectro gamma de la reacción $^2H(\alpha,\gamma)^6Li$ tomada con un detector de Ge en el Laboratorio LUNA. El espectro de fondo del laboratorio se muestra con negro y fue restado del espectro medido. Las más importantes líneas $\gamma$ debidas a reacciónes $(n,n')$ y $(n,\gamma)$ en los distintos materiales son mostrados con flechas.[16] | 5      |
| 1.5. | Espectro de fondo del Laboratorio LNGS(Lab. Nac. Gran Sasso)<br>medido con un detector de Ge a nivel del suelo, y bajo del suelo<br>con blindaje total $(Cu + Pb + anti - Rn)$ y parcial $(Cu + Pb)$ [16]  | 6      |
| 1.6. | Figura que muestra la sonda Odyssey de la NASA junto con el sistema de detección gamma. El espectro gamma se debe a la cap-<br>tura de neutrones térmicos por el hidrógeno debajo de la superficie de marte. [14]  | 7      |
| 2.1. | Distintas formas de un espectro gamma según el tamaño del detector[  | 20] 13 |
| 3.1. | Niveles de energía en sólidos  | 25     |
| 3.2. | Efecto fotoeléctrico atómico   | 27     |
| 3.3. | Izquierda: Distribución angular de fotones producidos por ani-<br>quilación en vuelo de positrones. Derecha: sección eficaz de<br>aniquilación por electrón en función de la energía cinética del<br>positrón[38]  | 32     |
| 3.4. | Esquema de decaimiento del ${}^{60}Co$   | 38     |
| 3.5. | Función de correlación angular $W(\theta)$ para el ${}^{60}Co$ . La línea azul representa a la función $R(\theta) = 5/21\pi$ correspondiente a una dis-  |        |
|      | tribución homogénea.   | 39     |

| 4.1.          | Geometría cilíndrica. En esta geometría, la muestra se sitúa enci-<br>ma del detector esta geometría suele ser usada para medir mues-<br>tras grandes de tamaños diversos (alrededor de 5 cm o 10 cm<br>aproximadamente).  | 45       |
|---------------|--|----------|
| 4.2.          | Geometría tipo pozo. En esta geometría el detector rodea casi<br>totalmente a la muestra, por este motivo suele usarse con muestras<br>pequeñas del orden de 1 o 2 cm de espesor.  | 45       |
| 4.3.          | Factores de auto-atenuación en función del coeficiente de atenua-<br>ción lineal para una muestra cilíndrica de radio $R = 3$ cm para<br>diferentes alturas de la muestra que van desde 0,5 cm a 10 cm.[57]  | 46       |
| 4.4.          | Eficiencia de pico medida y calculada para un detector tipo pozo<br>y una solución estándar conteniendo radioisótopos emisores mo-<br>nocromáticos donde los efectos de coincidencia pueden suponerse<br>despreciables[58]   | 46       |
| 4.5.          | Eficiencia de pico medida y calculada para soluciones estándar<br>de $^{134}Cs$ y $^{60}Co$ . Los valores medidos están representados por<br>los puntos (+) mientras que los valores experimentales para las<br>mismas energías usando fuentes monocromáticas de las mismas<br>energias están representados por los puntos rellenos[58]          | 47       |
| 4.6.          | La figura ilustra un detector, rodeado casi por completo por una<br>fuente radiactiva volumétrica (geometría Marinelli) y muestra fo-<br>tones emitidos desde dos núcleos distintos representados por las<br>flechas azules. Los fotones, sean emitidos desde un mismo núcleo<br>o desde núcleos distintos, pueden eventualmente interactuar si- | 10       |
| 17            | Encomposed de descriminate hete simple[CC]   | 40       |
| 4.1.          | Esquema de decamiento beta simple[66]  | 49<br>51 |
| 4.8.          | Esquema de decamiento beta complejo  | 01<br>50 |
| 4.9.<br>4.10. | Esquema de decamiento complejo posterior a la captura electronica.<br>Vista frontal del arreglo experimental utilizado y simulado a es-<br>cala real. El mismo fue realizado con el visualizador gráfico del<br>programa PENELOPE 2008   | 50<br>50 |
| / 11          | Vista lateral del dispecitivo de medición complete mestrando la  | 00       |
| <b>T</b> .11. | barra de enfriamiento.   | 60       |
| 4.12.         | Archivo de entrada del programa de simulación penmain. $\ .\ .$ .  | 63       |
| 5.1.          | Espectro simulado de una fuente monocromática medido con de-<br>tector grande que rodea totalmente la fuente. El espectro simulado<br>(azul) es reemplazado por una gaussiana de igual área, obteniendo<br>así el espectro convolucionado de la línea.   | 77       |

#### Bibliografía

| 5.2. | Espectro binario simulado con energías separadas ligeramente, pa-<br>ra el caso de un detector grande. Las líneas azules representan los<br>espectros simulados, la línea verde, representa el espectro simulado<br>y convolucionado total. | 78  |
|------|---|-----|
| 6.1. | Esquema del arreglo experimental utilizado mostrando el equipa-<br>miento electrónico y la disposición de la muestra.   | 80  |
| 6.2. | Muestra de aserrín puro finamente tamizado.   | 82  |
| 6.3. | Muestras de arena con diferentes proporciones de aserrín  | 82  |
| 6.4. | Muestras de arena con diferentes proporciones de aserrín y mues-<br>tra de aserrín puro tamizado.   | 83  |
| 6.5. | Muestra de sal (ClNa+ClK) con contenido de ${}^{40}K$   | 83  |
| 6.6. | Parte del instrumental utilizado.   | 84  |
| 6.7. | Vista superior del detector   | 84  |
| 6.8. | Vista del Laboratorio mostrando el dispositivo experimental com-<br>pleto   | 85  |
| 6.9. | Valor de $\sigma$ en función del número de canal para una muestra en particular.  | 86  |
| 7.1. | Espectro medido de una muestra volumétrica monoenergética de sal dietética (ClK) conteniendo ${}^{40}K$ . Algunos picos que no están señalados son debidos al fondo   | 88  |
| 7.2. | Comparación entre el fotopico del espectro simulado, con el fotopi-<br>co del espectro medido correspondiente a una muestra volumétrica<br>de sal dietética (ClK).  | 89  |
| 7.3. | Comparación entre el espectro simulado y medido de una muestra volumétrica de sal $(60\%$ de ClK + $40\%$ de Na) en la porción media (correspondiente al continuo compton) y baja del espectro.   | 90  |
| 7.4. | Comparación entre el espectro simulado y medido de una muestra volumétrica de sal ( $60\%$ de ClK + $40\%$ de Na) en todo el rango de energias del espectro.  | 91  |
| 7.5. | Comparación entre el espectro medido y el simulado total en el<br>pico doble escape. El factor de ajuste es el mismo que el usado   | 09  |
| 76   | Compara ajustar el locopico.  | 92  |
| 7.0. | de simple escape. Como puede verse, este pico está ausente en el  | 0.2 |
| 77   | Pice de eniguilación de positrones que des en la supertura de la  | 93  |
| 1.1. | (azul), superpuesto con el pico de 510,77 keV del $^{208}Tl$ del fondo (verde). El pico medido (rojo), es la combinación de ambos   | 95  |

159

| 7.8.  | Pico de aniquilación de positrones creados en una muestra vo-<br>lumétrica monocromática de $^{40}K$ . Se muestra el pico de 510,77 keV del $^{208}Tl$ del espectro de fondo (verde) que se filtra a través del blindaje y el espectro de fondo mas el contínuo compton (azul).                            | 97  |
|-------|--|-----|
| 7.9.  | Espectro medido de una fuente cuasi-puntual de ${}^{60}Co$ superpuesto<br>con el espectro de coincidencia en todo el rango de energías. Los<br>picos observados en el espectro medido con energías superiores a<br>1400 keV que no están presentes en el espectro de coincidencia,<br>son debidos al fondo | 100 |
| 7.10. | Ajuste del pico suma más la primera parte del espectro de coincidencia, más la línea de 1338.5 keV del $^{60}Co.$  | 101 |
| 7.11. | Ajuste en la parte media del espectro a la altura de la línea de 1338,5 keV. Se observa una exigua diferencia entre el compton del espectro simulado y el medido   | 101 |
| 7.12. | Ajuste entre el espectro simulado y el espectro medido en todo el rango de energías.   | 102 |
| 7.13. | Ajuste del fotopico de mayor energía presente en el espectro. El pico verde es el pico del $^{208}Tl$ presente en el piso y en el techo del Laboratorio.   | 103 |
| 7.14. | Espectro medido de una muestra con un contenido predominante<br>de elementos de la cadena del $^{238}U$ y el espectro de fondo, en todo<br>el rango de energías  | 104 |
| 7.15. | Comparación entre el espectro medido y el simulado más el fondo<br>de ambiente en el primer pico del espectro. Se muestra el ajuste<br>del fotopico y la primera parte del compton.  | 105 |
| 7.16. | Comparación entre el espectro medido y el simulado incluyendo las dos primeras líneas de energía más el fondo  | 106 |
| 7.17. | Octavo pico presente en el espectro en el orden de energías de-<br>crecientes. Se observa una pequeña diferencia de alrededor de 20<br>cuentas a ambos lados del fotopico debidas al fondo espurio   | 106 |
| 7.18. | Ajuste de la suma de las ocho primeros espectros simulados más el fondo mostrando el espectro suma completo sin el fondo espurio.  | 107 |
| 7.19. | Actividad obtenida para las líneas más intensas presentes en el espectro de una muestra con predominio de elementos de la cadena del $^{238}U$   | 110 |
| 7.20. | Ajuste del primer pico del espectro de una muestra con contenido predominante de elementos de la serie del $^{232}Th$ .  | 111 |
| 7.21. | Ajuste de las primeras cinco líneas del espectro   | 112 |
|       |  |     |

| 112 |
|-----|
| 13  |
| 14  |
| 115 |
| 115 |
| 117 |
| 119 |
| 119 |
| 21  |
| 121 |
| 122 |
| 123 |
|     |

| 7.34. Resultados oficiales de un ejercicio de intercomparación entre trece                 |     |
|--|-----|
| laboratorios de Europa. Los resultados marcados con tilde indican                          |     |
| valores que están fuera del intervalo entre $25\%$ y $75\%.$ Podemos                       |     |
| ver, que ningún laboratorio satisface la condición de estar dentro                         |     |
| del intervalo de confianza en todos los casos  | 124 |
| 7.35. Eficiencia total en función de la energía para distintas densidades                  |     |
| de una muestra volumétrica   | 127 |
| 7.36. Eficiencia de pico en función de la energía para distintas densida-                  |     |
| des de una muestra volumétrica   | 128 |
| 7.37. Eficiencia de pico en función de la energía entre $\left[0;1000\right]$ keV para     |     |
| distintas densidades de una muestra volumétrica  | 128 |
| 7.38. Eficiencia de pico en función de la energía entre $\left[1000;2700\right]~{\rm keV}$ |     |
| para distintas densidades de una muestra volumétrica                                       | 129 |
| 7.39. Eficiencia de pico $\epsilon_P$ en función de la energía y la densidad               | 130 |
| 7.40.Valores de la relación C para picos de distinta energía y para la                     |     |
| relación entre densidades $(1,670/1,307)$  | 133 |
| 7.41. Valores de la relación ${\cal C}$ para picos de distinta energía y para la           |     |
| relación entre densidades $(1,670/0,648)$ .  | 134 |
## Índice de tablas

| 6.1.                                | Parámetros de operación del instrumental  | 79   |
|-------------------------------------|---|------|
| <ul><li>7.1.</li><li>7.2.</li></ul> | Valores de la actividad de una muestra monocromática de ${}^{40}K$ calculada usando los distintos picos característicos de su espectro.<br>Valores de la actividad obtenidos para una muestra de arena para | 99   |
|                                     | las principales lineas y elementos de la serie del $^{250}U$ en equilibrio<br>radiactivo.   | 108  |
| 7.3.                                | Principales energías (intensidad > 1,0%) presentes en el espectro de una muestra con prominencia de elementos de la serie del $^{232}Th$  | .116 |
| 7.4.                                | Comparación entre los resultados obtenidos para la actividad es-<br>pecífica (Bq/Kg) medidas por nuestro Laboratorio (a) y el Labo-<br>ratorio de Badiología Ambiental (b).                                 | 118  |
| 7.5.                                | Parámetros estadísticos de un conjunto de mediciones de la acti-<br>vidad de $^{226}Ba$ contenido en una muestra de suelo realizadas por  | 110  |
| 76                                  | catorce laboratorios de radiactividad de Europa   | 122  |
| 7.7                                 | vidad de $^{228}Ac$ contenido en una muestra de arena realizado por 12 laboratorios de radiactividad de Europa  | 123  |
| (.(.                                | valores de la enciencia total $\epsilon^2$ y de la enciencia de pico $\epsilon^2$ para una densidad de 1,67 $(g/cm^3)$ y distintas energías, obtenidas mediante simulación Monte Carlo                      | 125  |
| 7.8.                                | Valores de la eficiencia total $\epsilon^T$ y de la eficiencia de pico $\epsilon^P$ para<br>tres densidades distintas y distintas energías obtenidas mediante   | 120  |
| 7.9.                                | simulación Monte Carlo  | 126  |
|                                     | una densidad de 0,6148 $(g/cm^3)$ y distintas energías, obtenidas mediante simulación Monte Carlo   | 127  |
| 7.10.                               | . Valores del cociente $C$ para picos de distinta energía y para dos densidades distintas   | 132  |
| 7.11.                               | . Valores del cociente $C$ para picos de distinta energía y para dos densidades distintas   | 133  |