

# Análisis por espectrometría $\gamma$ de radionúclidos naturales en el entorno de una mina de uranio mediante la aplicación GALEA

*R. Santamaría, B. Quintana*

Grupo de Física Nuclear Experimental. Universidad de Salamanca. 37008 Salamanca (España)

## Introducción

Son muchos los estudios ambientales que requieren de la medida de radionúclidos naturales como  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$ . Por formar parte del fondo natural, todos ellos contribuyen a la dosis a la que la población está expuesta<sup>1</sup>, por lo tanto, una alteración de las concentraciones en las que se encuentran en la naturaleza debe ser vigilada. Los cambios en la distribución de estos radionúclidos pueden producirse tanto en la industria nuclear, sobre todo en actividades mineras y de preconcentración del uranio<sup>2</sup>, como en la industria no nuclear, concretamente en la producción de fertilizantes fosfatados<sup>3</sup> y procesos cerámicos. Por otra parte, los estudios de evolución de sistemas costeros y de aguas continentales utilizan los desequilibrios entre radionúclidos de la misma serie de desintegración como trazadores de la dinámica sedimentaria<sup>4</sup>.

Tradicionalmente, estos radionúclidos se miden mediante espectrometría  $\alpha$  o, como en el caso de la medida directa del  $^{210}\text{Pb}$ , por separación radioquímica con conteo  $\beta$ . Sin embargo, estas técnicas limitan el número de muestras a incluir en el estudio ya que los procesos radioquímicos suelen necesitar mucho trabajo de laboratorio. Una técnica que en la actualidad se presenta como alternativa es la espectrometría  $\gamma$  que no requiere tratamiento químico por ser una técnica multielemental. Su principal inconveniente son sus elevados límites de detección, lo cual redundaría en una menor precisión en las medidas. Sin embargo, con una adecuada optimización orientada a la mejora de la relación pico/fondo mediante la utilización de detectores HPGe muy eficientes, montados en sistemas libres de impurezas radiactivas y con blindajes tanto pasivos como activos, se disminuyen los límites de detección. Si esto se combina con un análisis de espectros experto en la medida de radionúclidos naturales se consigue un aumento significativo en la precisión de las medidas.

En este trabajo, presentamos los primeros resultados obtenidos de utilizar un espectrómetro  $\gamma$  de bajo fondo junto con la herramienta de desarrollo propio GALEA, un analizador experto de espectros  $\gamma$  optimizado para el análisis de radionúclidos naturales. Las muestras utilizadas en el estudio proceden de una zona con un alto grado de mineralización de uranio en la que se encuentra una antigua instalación de extracción de uranio.

## Metodología

El sistema de espectrometría  $\gamma$  utilizado consta de un detector HPGe del 50% de eficiencia relativa, modelo BEGE de CANBERRA. Este detector tiene la particularidad de tener un diámetro mayor que los detectores convencionales y, aun siendo tipo p, no posee capa inactiva en la cara superior del cristal. La cadena electrónica consta de un amplificador modelo 2026, de un ADC modelo 8701 y de una tarjeta multicanal AccuSpec B; todos de la marca CANBERRA.

Las muestras medidas corresponden a tres suelos ( $S1$ ,  $S2$ ,  $S3$ ) recogidos en el mismo punto de muestreo y a una muestra de juncos ( $J$ ) de la misma zona. El tratamiento realizado sobre los suelos ha consistido únicamente en su secado y posterior molienda. El recipiente utilizado para su medida es una caja Petri de 9 cm de diámetro. A la muestra de juncos se le ha realizado una digestión húmeda con  $\text{HNO}_3$  para su disolución y evaporación hasta un volumen de 60 ml, el correspondiente a un bote Duquesa de 5 cm de diámetro.

El análisis de espectros realizado con GALEA consiste, primero, en una búsqueda experta de las emisiones en el espectro para, posteriormente, realizar un ajuste de picos y multipletes con restricciones mediante la combinación de un algoritmo genético y un ajuste por mínimos cuadrados usando el método de Levenverg-Marquardt. En la búsqueda, GALEA utiliza la librería de radionúclidos LARA<sup>5</sup> y, en el ajuste del espectro, incorpora el algoritmo para el ajuste global del continuo COSPAJ<sup>6</sup>.

Para el cálculo de actividades, además de las áreas proporcionadas por GALEA se utilizan calibraciones de la eficiencia obtenidas utilizando un método empírico<sup>7</sup>. A las áreas de los picos más intensos se les han aplicado las correcciones por suma en coincidencia de las que disponemos para las tres series de desintegración naturales<sup>8</sup>. Una vez calculadas las actividades correspondientes a cada una de las emisiones identificadas de un radionúclido, el valor final de la actividad corresponde a su media ponderada y la incertidumbre a la desviación estándar de la media.

## Resultados

En la Tabla 1 presentamos las actividades obtenidas para las distintas muestras  $S1$ ,  $S2$ ,  $S3$  y  $J$ . El intervalo de energías tenido en cuenta en el análisis va de 40 a 1500 keV. En este intervalo, las emisiones utilizadas

This document was created by the trial version of Print2PDF. !

Once Print2PDF is registered, this message will disappear.!

Purchase Print2PDF at <http://www.software602.com>

para el cálculo de actividades aparecen en las Tablas 2 a 6, excepto para el  $^{210}\text{Pb}$  y el  $^{230}\text{Th}$ . Para estos radionúclidos se utiliza una sola emisión: las de 46,54 y 67,67 keV, respectivamente. En las tablas se incluyen tanto emisiones directas de los radionúclidos de interés como emisiones de sus descendientes con los que se encuentran en equilibrio. Para cada radionúclido, se resalta en negrita la emisión que utiliza GALEA para ratificar la existencia del radionúclido en la muestra y que sirve de referencia para los valores correspondientes al resto de las emisiones. En el caso de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  y  $^{235}\text{U}$ , GALEA identifica un mayor número de emisiones que, en esta fase de desarrollo del programa, no hemos considerado o bien por tener muy baja probabilidad o bien por corresponder a más de un radionúclido, como es el caso de los rayos X.

	<i>S1</i>	<i>S2</i>	<i>S3</i>	<i>J</i>
$^{210}\text{Pb}$	7,2 (2)	7,1 (2)	7,1 (2)	6,3 (2)
$^{230}\text{Th}$	6,6 (11)	4,5 (9)	5,6 (11)	1,7 (5)
$^{226}\text{Ra}$	5,03 (7)	4,86 (5)	5,09 (7)	3,08 (8)
$^{228}\text{Ra}$	3,43 (1)	3,12 (2)	3,34 (5)	2,02 (5)
$^{228}\text{Th}$	3,25 (12)	2,88 (8)	3,22 (10)	1,41 (4)
$^{235}\text{U}$	0,47 (3)	0,33 (2)	0,34 (3)	0,38 (2)
$^{238}\text{U}$	5,6 (9)	7,3 (5)	6,3 (2)	9,4 (3)

Tabla 1: Media de las actividades (Bq) para cada radionúclido

En el cálculo de la actividad del  $^{226}\text{Ra}$  se utilizan tanto su emisión directa a 186,21 keV como varias emisiones del  $^{214}\text{Pb}$  y  $^{214}\text{Bi}$  para lo que es necesario asegurarnos de que los descendientes del  $^{222}\text{Rn}$  se encuentran en equilibrio con el  $^{226}\text{Ra}$ . Esto se comprueba directamente de la comparación entre las actividades calculadas de las distintas emisiones. En particular, se observa cómo los resultados que se dan en la Tabla 2 no difieren entre sí. Estos valores a su vez demuestran que tanto la deconvolución realizada para la emisión de 351,93 keV (ver Fig. 1) como la deconvolución de la emisión directa del  $^{226}\text{Ra}$  a 186,21 keV son correctas, como vamos a comprobar cuando analicemos los resultados obtenidos para el  $^{235}\text{U}$ .

<i>E</i> (keV)	<i>S1</i>	<i>S2</i>	<i>S3</i>	<i>J</i>
186,21	5,70 (146)	5,14 (205)	5,21 (192)	2,98 (23)
241,98	4,94 (17)	4,67 (16)	5,19 (19)	2,71 (20)
351,92	5,05 (12)	4,91 (12)	5,19 (11)	2,99 (13)
<b>609,32</b>	<b>4,94 (6)</b>	<b>4,82 (6)</b>	<b>5,08 (7)</b>	<b>3,04 (4)</b>
768,36	4,14 (34)	4,37 (32)	4,95 (19)	2,93(10)
806,19	4,42 (53)	4,20 (51)	4,28 (32)	3,37 (34)
934,06	5,32 (27)	5,38 (26)	4,43 (27)	2,64 (15)
1120,29	5,30 (12)	4,91 (11)	5,21 (12)	3,33 (8)
1238,11	5,28 (22)	5,14 (20)	5,46 (22)	3,96 (17)
1377,67	5,79 (31)	5,46 (29)	5,36 (72)	3,45 (19)
1401,51	5,24 (52)	5,12 (48)	4,56 (48)	2,40 (29)
1408,00	5,11 (38)	4,47 (34)	4,51 (36)	2,97 (23)

Tabla 2: Actividades (Bq) del  $^{226}\text{Ra}$

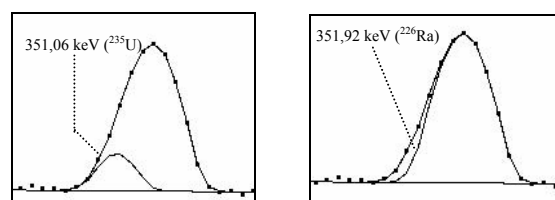


Fig. 1: Deconvolución de la emisión del pico a 351,92 keV del  $^{226}\text{Ra}$

El  $^{232}\text{Th}$  se determina por espectrometría  $\gamma$  a partir del  $^{228}\text{Ra}$ , aunque no siempre se encuentran en equilibrio en la naturaleza. En los valores presentados en la Tabla 3, se observa que los valores obtenidos a 911,20 y 968,97 keV, ambos corregidos por el efecto de suma en coincidencia, son sistemáticamente mayores que los de las emisiones de menor energía, lo que indica que estas últimas se ven también afectadas por la suma en coincidencia, no pudiendo ser incluidas en el cálculo final de la actividad promedio. En la Fig. 2 se muestra el detalle de la deconvolución de las emisiones de 409,46 keV y 463,00 keV.

<i>E</i> (keV)	<i>S1</i>	<i>S2</i>	<i>S3</i>	<i>J</i>
129,07	2,96 (19)	2,35 (17)	2,40 (18)	1,30 (9)
270,24	2,63 (40)	1,55 (17)	2,93 (25)	0,98 (18)
409,46	3,08 (26)	2,33 (23)	3,13 (28)	1,58 (12)
463,00	3,03 (17)	2,62 (21)	3,11 (14)	1,61 (7)
794,95	2,85 (17)	2,33 (15)	3,07 (18)	1,75 (10)
911,20	3,42 (8)	3,15 (7)	3,38 (8)	2,06 (5)
968,97	3,45 (10)	3,10 (9)	3,28 (10)	1,95 (6)

Tabla 3: Actividades (Bq) del  $^{228}\text{Ra}$  ( $^{232}\text{Th}$ )

235,97 keV ( $^{235}\text{U}$ )

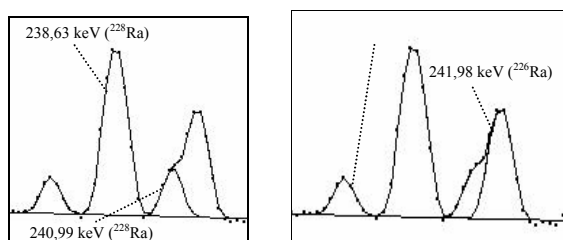


Fig. 2: Deconvolución del pico de  $^{228}\text{Ra}$  a 463.00 keV. A su izquierda el pico de 409,46 keV.

Para la estimación del  $^{228}\text{Th}$  se han aplicado las correcciones por suma en coincidencia a las emisiones de 583,19 y 727,33 keV. Una vez hecho esto, todos los valores coinciden salvo para la emisión de 240,99 keV de la Tabla 4, lo que puede indicar la necesidad de ser corregida por suma en coincidencia.

E (keV)	<i>S1</i>	<i>S2</i>	<i>S3</i>	<i>J</i>
<b>238,63</b>	<b>3,15 (4)</b>	<b>2,82 (3)</b>	<b>3,13 (4)</b>	<b>1,31 (9)</b>
240,99	2,49 (16)	2,36 (21)	2,77 (19)	1,26 (10)
583,19	3,57 (6)	3,12 (7)	3,41 (6)	1,40(3)
727,33	3,37 (12)	3,38 (12)	3,74 (13)	1,56 (6)
860,57	3,18 (17)	2,91 (16)	2,79 (17)	1,44 (9)

Tabla 4: Actividades (Bq) del  $^{228}\text{Th}$

Para la determinación de la actividad del  $^{235}\text{U}$  se han efectuado correcciones a todas las emisiones salvo a las tres últimas. Entre las emisiones incluidas en la Tabla 5, la más importante es la de 185,71 keV que aparece solapada a la de 186,21 keV del  $^{226}\text{Ra}$  (ver Fig. 3). A pesar de esto, el valor de la actividad del  $^{235}\text{U}$  que obtenemos de esta emisión es coincidente con los del resto de emisiones como ocurría también para el  $^{226}\text{Ra}$ . Ambos resultados validan la deconvolución realizada por GALEA. En la Fig. 4 se aprecia el detalle del análisis de la emisión de 205,31 keV, cuyo resultado también coincide con los del resto de emisiones.

E (keV)	<i>S1</i>	<i>S2</i>	<i>S3</i>	<i>J</i>
143,76	0,51 (4)	0,37 (6)	0,32 (29)	0,40 (3)
<b>185,71</b>	<b>0,45 (8)</b>	<b>0,50 (12)</b>	<b>0,47 (11)</b>	<b>0,43 (3)</b>
205,31	0,44 (8)	-	0,22 (7)	0,32 (3)
235,97	0,40 (7)	0,37 (9)	0,35 (7)	0,33 (6)
269,46	0,28 (14)	0,23 (3)	0,20 (8)	0,40 (6)
271,23	0,31 (13)	0,36 (9)	0,28 (9)	0,36 (5)
351,06	0,66 (13)	0,63 (14)	0,35 (10)	0,43 (4)
401,81	0,41 (8)	0,31 (2)	0,41 (7)	0,32 (4)

Tabla 5: Actividades (Bq) del  $^{235}\text{U}$

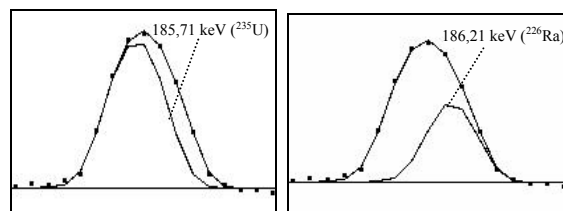


Fig. 2: Deconvolución del multiplete de [184-188] keV

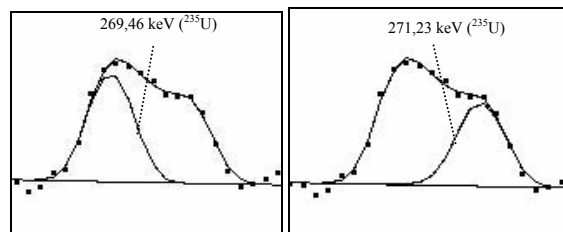
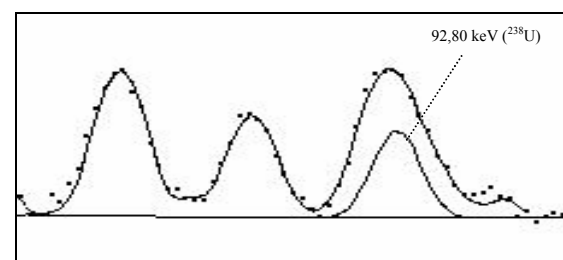
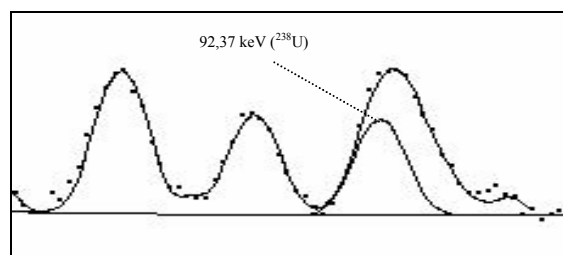


Fig. 4: Deconvolución del multiplete de [265-275] keV

Respecto a los valores obtenidos para el  $^{238}\text{U}$ , como se observa en la Tabla 6, los incluidos en el multiplete que va de 80 a 100 keV (ver Fig. 5) son superiores a los obtenidos de las emisiones aisladas a 63,29 keV y 1001,03 keV. Sin embargo, las incertidumbres asignadas por el algoritmo de ajuste hacen que estos valores coincidan con el resto. En cualquier caso, pensamos que todavía existe la posibilidad de mejorar la precisión del ajuste lo que redundaría en la disminución de la incertidumbre final.

E (keV)	<i>S1</i>	<i>S2</i>	<i>S3</i>	<i>J</i>
<b>63,29</b>	<b>5,5 (10)</b>	<b>6,0 (10)</b>	<b>6,2 (11)</b>	<b>7,7 (13)</b>
92,37	6,9 (38)	8,8 (16)	8,1 (33)	11,0 (74)
92,80	7,6 (29)	8,3 (14)	6,7 (15)	8,9 (6)
98,44	7,0 (23)	8,1 (11)	5,8 (46)	9,9 (7)
1001,03	5,4 (8)	7,0 (8)	6,2 (9)	10,0 (6)

Tabla 6: Actividades (Bq) del  $^{238}\text{U}$



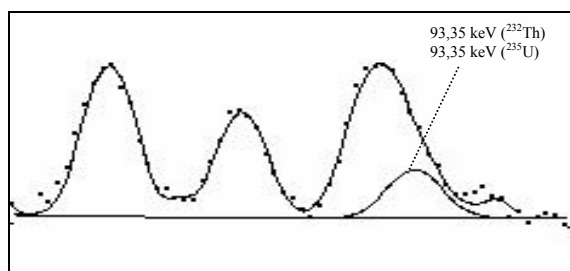


Fig. 5: Detalle de la deconvolución del multiplete de [70-100] keV

## Conclusiones

El uso del máximo número de emisiones de un radionúclido en el espectro, aunque condicionado por los factores de corrección por suma en coincidencia disponibles, contribuye a un cálculo más robusto de su actividad y a la disminución de errores sistemáticos e incertidumbres. Aunque GALEA es todavía una herramienta en desarrollo, en este estudio demuestra que, utilizando una búsqueda experta de emisiones de naturales en el espectro, proporciona ajustes de picos y multipletes consistentes. Las actividades obtenidas para los distintos radionúclidos naturales incluidos en el estudio así lo demuestran. Esto, unido a la alta sensibilidad del sistema de espectrometría  $\gamma$  empleado, que permite por ejemplo la medida del  $^{230}\text{Th}$ , hacen de la espectrometría  $\gamma$  una técnica muy competitiva en estudios ambientales de distribución de radionúclidos naturales con un alto número de muestras.

## Referencias

1. Pietrzak-Flis, Z., Rosiak, L., Suplinska, M.M., Chrzanowski, E., Dembinska, S. Daily intakes of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Th}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in the adult population of central Poland. *Science of the Total Environment*, 273, 163-9, 2001.
2. Lozano, J.C., Blanco Rodriguez, P., Tome, F.V. Distribution of long-lived radionuclides of the  $^{238}\text{U}$  series in the sediments of a small river in a uranium mineralized region of Spain. *Journal of Environmental Radioactivity*, 63, 153-71, 2002.
3. Bolivar, J.P., García Tenorio, R., García León, M. Enhancement of natural radioactivity in soils and salt marshes surrounding a non nuclear industrial complex. *Science of the Total Environment*, 173, 175-36, 1995.
4. Ivanovich, H., Harmon, R.S. Uranium-series disequilibrium: application to earth, marine and environmental sciences. Oxford Science Publications. Oxford, 1992.
5. Morillon, C., Bé, M. M., Lamé, J., Jean, C. Nucléide-Lara. Bibliothèque des émissions Gamma et Alpha. Commissariat à l'Energie Atomique. France. 2000.
6. Quintana, B., Fernández, F., Continuous component determination in  $\gamma$ -ray spectra. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 411, 475-93, 1998.
7. Daza, M.J., Quintana, B., García-Talavera, M., Fernández, F. Efficiency calibration of a HPGe Detector in the [46.54-2000] keV energy range for the measurement of environmental samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 470, 520-32, 2001.
8. García-Talavera, M., Laedermann, J.P., Décombaz, M., Daza, M.J., Quintana, B. Coincidence summing corrections

for the natural decay series in g-ray spectrometry. *Journal of Radiation and Isotopes* 54, 769-76, 2001.