

**Determinación de ^{232}Th , ^{238}U y ^{40}K en suelos de
diferentes zonas de Colombia a través de
espectroscopía de rayos γ**

Autor:
Edgar Fabián Mendoza Rodríguez

**Universidad Industrial de Santander
Facultad de Ciencias
Escuela de Química
2009**

**Determinación de ^{232}Th , ^{238}U y ^{40}K en suelos de
diferentes zonas de Colombia a través de
espectroscopía de rayos γ**

Autor:
Edgar Fabián Mendoza Rodríguez

Trabajo de grado para optar al título de Químico

Dirigido por:
Dr. Fernando Cristancho Mejía
Dr. Enrique Mejía Ospino

**Universidad Industrial de Santander
Facultad de Ciencias
Escuela de Química
2009**

Agradecimientos

Mis especiales agradecimientos con el Comité de Trabajos de Grado de la Escuela de Química por haberme permitido llevar a cabo la pasantía de investigación como modalidad de proyecto de grado. Igualmente expreso mis sinceros y especiales agradecimientos con el Profesor Fernando Crispancho Mejía por abrirme las puertas del *grupo de física nuclear de la universidad nacional*, al Profesor Enrique Mejía quien estuvo al frente del desarrollo de este trabajo desde la UIS, su colaboración fue imprescindible para llevar a cabo la pasantía.

Agradezco infinitamente la labor incansable y paciente de mi Padre, el sacrificio y deseo de mi Madre por querer siempre darnos lo mejor aunque hayan serias limitaciones, a mis Abuelos por ser los patrocinadores oficiales de mi pregrado, finalmente, y como quien deja lo mejor para lo último, doy gracias a Dios por el constante aliento que recibo a través de su palabra.

*“He aquí, pues, el bien que yo he visto:
Que lo bueno es comer y beber, y gozar uno del bien de todo su trabajo con que se
fatiga debajo del Sol, todos los días de su vida que Dios le ha dado; por que esto es
su parte...” Eclesiastés 5:18*

Índice general

Agradecimientos	III
Prefacio	XI
1. Aspectos Generales	1
1.1. Radiactividad Natural	1
1.2. Ley de decaimiento radiactivo	1
1.3. Cadenas radiactivas naturales	4
1.3.1. Equilibrio radiactivo	6
1.4. El Suelo	8
1.4.1. ¿Qué se entiende por suelo?	8
1.4.2. Radiactividad en rocas y suelos	9
2. Fundamento teórico: La técnica y el experimento	10
2.1. Espectroscopía γ	10
2.1.1. ¿Qué son los rayos γ ?	10
2.2. Interacción de los rayos γ con la materia	11
2.2.1. Efecto Fotoeléctrico	12
2.2.2. Efecto Compton	12
2.2.3. Producción de pares	14
2.3. Detector de Germanio Hiperpuro (HPGe)	15
2.3.1. Sistema de detección	16
2.3.2. Registro de los rayos γ	17
2.3.3. Características generales del detector	18
2.4. Ajuste de espectros	20
2.5. Calibración del detector	21
2.5.1. Calibración en energía	21
2.5.2. Calibración en eficiencia	21
2.6. Análisis cuantitativo	23

2.6.1. Actividad específica	23
2.6.2. Concentración elemental	23
2.7. Magnitudes dosimétricas	24
2.8. El experimento	25
2.8.1. Colección y tratamiento de las muestras	25
2.8.2. La medición espectroscópica	26
3. Resultados y análisis	28
3.1. Tratamiento de las muestras	28
3.2. Espectros de calibración	29
3.2.1. En energía	29
3.2.2. En eficiencia	31
3.3. Análisis de las muestras	34
3.4. Conclusiones	45
3.5. Recomendaciones	47
A. Presentación de resultados	48
A.1. Propagación de errores aleatorios	48
A.1.1. Combinaciones lineales	49
A.1.2. Expresiones multiplicativas	49
A.1.3. Otras funciones	49
A.2. Propagación de errores sistemáticos	49
A.2.1. Combinaciones lineales	50
A.2.2. Expresiones multiplicativas	50
A.2.3. Otras funciones	50
B. Divulgación del trabajo	51

Índice de figuras

1.1. Desintegración radiactiva del ^{222}Rn	3
1.2. Cadena radiactiva del ^{238}U	4
1.3. Cadenas radiactivas del ^{232}Th y ^{235}U	5
1.4. Desintegración radiactiva del ^{211}Bi , ^{207}Tl y ^{207}Pb	7
1.5. Composición volumétrica promedio del suelo	9
2.1. Decaimientos del ^{40}K y ^{38}Cl	11
2.2. Efecto fotoeléctrico, efecto Compton y producción de pares	11
2.3. Regiones del espectro de la fuente de ^{137}Cs	13
2.4. Espectro γ de una roca radiactiva	14
2.5. Bandas de un material aislador, semiconductor y conductor	15
2.6. Diagrama de bloques del sistema de detección	16
2.7. Señal proveniente del amplificador	17
2.8. Distribución hecha por el MCA	18
2.9. FWHM del pico de la fuente de ^{137}Cs	19
2.10. Espectros usando el detector de NaI y el HPGe	19
2.11. Ejemplo de ajuste del espectro de ^{57}Co	20
2.12. Zona de toma de muestras	26
2.13. Montaje experimental	27
3.1. Espectros de la fuente de Eu	29
3.2. Rectas de calibración en energía	30
3.3. Espectros de los patrones RGTh-1 y RGU-1	31
3.4. Espectro del patrón RGK-1	32
3.5. Ajuste de eficiencia relativa de la cadena del ^{232}Th	33
3.6. Ajuste de eficiencia relativa de la cadena del ^{238}U	34
3.7. Secciones del espectro de la radiación de fondo	35
3.8. Espectro de la muestra de Nemocón	36
3.9. Espectro de la muestra de Bogotá - UNAL	37

3.10. Espectro de la muestra de Pamplona	38
3.11. Espectro de la muestra de Cúcuta	39
3.12. Espectro de la muestra de San Andrés Islas	40
3.13. Concentración de ^{232}Th y ^{238}U en diferentes partes del Mundo	42
3.14. Concentración de ^{40}K en diferentes partes del Mundo	43
3.15. Dosis efectivas en diferentes partes del Mundo	44
3.16. Fuentes de radiación y exposición promedio Mundial	45

Índice de cuadros

1.1. Abundancia de radionúclidos en la naturaleza	2
2.1. Concentraciones y densidades de los materiales de referencia	23
3.1. Porcentaje de humedad en las muestras	28
3.2. Caracterización inicial del espectro de la fuente de Eu	29
3.3. Caracterización final del espectro de la fuente de Eu	30
3.4. Espectro del patrón RGK-1	32
3.5. Picos caracterizados del espectro del patrón RGTh-1	32
3.6. Picos caracterizados del espectro del patrón RGU-1	33
3.7. Caracterización de los picos del espectro de fondo	35
3.8. Análisis del espectro de la muestra de Nemocón	36
3.9. Análisis del espectro de la muestra de Bogotá - UNAL	37
3.10. Análisis del espectro de la muestra de Pamplona	38
3.11. Análisis del espectro de la muestra de Cúcuta	39
3.12. Análisis del espectro de la muestra de San Andrés Islas	40
3.13. Actividades específicas de la colección de muestras	41
3.14. Concentraciones elementales de la colección de muestras	41
3.15. Tasa de dosis absorbida y efectiva	44

Título: Determinación de ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K en muestras de suelo de diferentes regiones de Colombia a través de espectroscopía de rayos γ .

Autor: Edgar Fabián Mendoza Rodríguez.

Palabras claves: Radiactividad natural, suelo, rayos γ , detector HPGe.

Contenido:

Los radionúclidos naturales ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K , son los principales emisores de radiación γ terrestre, su concentración depende de los diferentes procesos de mineralización que experimentan las rocas en la corteza terrestre. Calcular la concentración de estos radionúclidos es de gran importancia puesto que a través de dichos calculos se puede evaluar la exposición debida a la radiación natural en los seres humanos.

Teniendo en cuenta la amplia variedad de relieves geográficos que se dan en Colombia, tomamos una colección de muestras de suelo que van desde ecosistemas costeros hasta zonas de alta montaña, en las cuales se determinó las concentraciones de ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K usando un sistema de detección de rayos γ de alta resolución, tal como lo es el detector HPGe. Las concentraciones calculadas muestran una variación que asociamos, en principio, a los diferentes procesos de formación geológica, el tipo de suelo y las condiciones ambientales que definen las zonas escogidas para la toma de muestras. Finalmente realizamos un estudio comparativo con investigaciones hechas en países como Brasil, Austria e Italia (entre otros) de tal manera que se compararon tanto las concentraciones elementales como las magnitudes dosimétricas debidas a la radiación γ .^{1 2 3}

¹Proyecto de grado.

²Facultad de Ciencias, Escuela de Química.

³Director: Fernando Crstancho; Codirector: Enrique Mejía.

Title: Measurements of ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K in soils of different regions of Colombia.

Author: Edgar Fabián Mendoza Rodríguez.

Keywords: Radioactivity natural, soils, gamma ray, detector HPGe.

Content:

The natural radionuclides ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K are the most important gamma ray emitters present in the earth crust and its concentration depends mainly on the processes of mineralization and geological formation that occur in nature. The determination of such concentrations is important because it allow us to know the radiation exposure to human beings in different regions and thus watch the dose levels received by the population. Taking into account the wide variety of geographical reliefs in Colombia, we took a collection of samples both from sand beaches and high mountains systems and determined its concentration of ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K using a high resolution gamma spectrometry system. The results of such measurements show a variation of these concentration for the different samples that we associate with the geological formations, the soil type and the environmental conditions of the chosen regions. We also compare our results with other studies made in regions with similar geological conditions. ^{1 2 3}

¹Proyecto de grado.

²Facultad de Ciencias, Escuela de Química.

³Director: Fernando Cristancho; Codirector: Enrique Mejía.

En las últimas décadas las investigaciones acerca de la radiación natural se han aumentado y extendido en los diferentes continentes del planeta por varias razones que reportan autores como: Mahur (2008), Ramli (2000), Frenzel (1993) entre otros, siendo la principal de ellas evaluar el efecto que tienen dichas radiaciones sobre los seres humanos.

En países como Austria, Brazil, China, Francia, India e Italia se han encontrado regiones con altos niveles de radiación natural los cuales están relacionados con un aumento en el índice de cáncer pulmonar provocado por el radón (^{222}Rn), radionúclido que después del tabaco se considera como la segunda causa de este tipo de cáncer Little et al. (2001); este gas al decaer con una semivida de 3.8 d (suficiente para que alcance los pulmones) emite partículas α que impactan las células de las vías respiratorias generando un efecto degenerativo en los alveolos pulmonares NRC (1988) y Samet (1989).

Teniendo en cuenta lo mencionado, se estableció como objetivo principal de este trabajo la determinación de las concentraciones de ^{232}Th , ^{238}U y ^{40}K en muestras de suelo de zonas Colombianas, donde predominan rocas sedimentarias como areniscas, conglomerados y sílice, a través de la espectroscopía de rayos γ que es una técnica analítica no destructiva ampliamente utilizada en este tipo de estudios. De esta manera presentamos un análisis comparativo de las concentraciones encontradas con las publicadas por Anjos en Brazil (2004), Termizi en Palong Malasia (2005), Bellia en el Sur de Italia (1997) y Florou en el área costera de una Isla Volcánica en Grecia (1992), entre otros. Además, con el fin de estimar los efectos radiológicos se calcularon las dosis de radiación anual y las comparamos con las reportadas por United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR, 2000) concluyendo que las concentraciones obtenidas se encuentran dentro de los límites convencionales y no representan riesgo radiológico, sin embargo, debido a que las muestras colectadas no representan un terreno objeto de estudio, proponemos finalmente llevar a cabo estas mediciones haciendo muestreos intensivos y elaborando mapas de radiación natural en regiones Colombianas, donde por las condiciones geológicas del terreno se sospeche la presencia de material radiactivo tal como ocurre en Zapatoca y California (Santander) y Paipa (Boyacá).

1.1. Radiactividad Natural

La radiactividad natural fue descubierta a fines del siglo XIX por H. Becquerel, Pierre y Marie Curie y es el fenómeno por el cual núcleos atómicos que poseen combinaciones de protones y neutrones que no conducen a una configuración estable (radionúclidos), se desintegran espontáneamente mediante la emisión de partículas α o β generalmente acompañada de fotones de radiación γ hasta que alcanzan una configuración nuclear estable. Por otro lado, la radiactividad natural es la radiación procedente de las desintegraciones que ocurren en la corteza terrestre por radionúclidos como el ^{232}Th , ^{238}U y el ^{40}K (ver Cuadro 1.1), o de origen extraterrestre, procedente de las reacciones nucleares que se dan en el Sol y otras Estrellas. Sin embargo los radionúclidos presentes en la naturaleza se han clasificado como:

- a) *Primordiales*: Están presentes en la Tierra desde sus inicios, ejemplo ^{40}K .
- b) *Cosmogénicos*: Son formados continuamente por las interacciones de los rayos cósmicos con la materia, y se caracterizan por sus cortos tiempos de vida, por ejemplo el ^3He .
- c) *Antropogénicos*: Han sido introducidos al medio ambiente por diversas actividades humanas como lo son: Ensayo de armas nucleares, operación de plantas de energía nuclear y los residuos generados por la medicina nuclear.

1.2. Ley de decaimiento radiactivo

La *Actividad* de cierta masa de material radiactivo se define como el número de desintegraciones por unidad de tiempo, siendo una desintegración el proceso por el cual

Cuadro 1.1: Abundancia en la corteza terrestre [1], abundancia isotópica [2] y semivida de los padres de las cadenas de desintegración y del isótopo radiactivo del potasio.

Radionúclido	Abundancia elemental en la corteza terrestre %	Abundancia isotópica %	Semivida $T_{1/2}$ 10^8 a
^{232}Th	0.0012	100	141
^{238}U	0.0004	99.274	44.7
^{235}U	0.0004	0.72	7
^{40}K	2.58	0.0117	12.5

un núcleo se transforma en otro o pasa de un estado de energía excitado a otro de menor energía. En la sección anterior comentábamos que las desintegraciones pueden ocurrir por procesos de decaimiento α o β (entre otros), siendo una característica común de estos procesos el hecho que la desintegración de los núcleos se lleva a cabo de manera exponencial con respecto al tiempo. Por lo tanto, si N_0 es el número inicial de radionúclidos, el número de radionúclidos N que quedan luego del tiempo t está dado por:

$$N = N_0 e^{-\lambda t}, \quad (1.1)$$

donde λ es una constante característica de cada núcleo denominada *constante de desintegración*, y representa la probabilidad promedio de que un núcleo decaiga por unidad de tiempo, su inverso es un tiempo definido como

$$\tau = \frac{1}{\lambda} \equiv \text{vida media}, \quad (1.2)$$

que matemáticamente se obtiene del

$$\text{valor esperado del tiempo de vida} = \langle t \rangle \equiv \int_0^{\infty} tP(t)dt = \int_0^{\infty} te^{-t/\tau}dt = \tau,$$

y estadísticamente representa el tiempo promedio de decaimiento de un núcleo. En la práctica τ es el tiempo durante el cual la cantidad de núcleos de una muestra se reduce en un $e^{-1} \% \approx 37 \%$.

Por otro lado, para cada radionúclido se establece un tiempo de *semivida* ($T_{1/2}$) durante el cual se reduce el número de núcleos iniciales a la mitad al término del mismo. Así, si inicialmente hay N_0 núcleos de cierto radionúclido después del tiempo $T_{1/2}$ quedan $N_0/2$, si transcurren $2T_{1/2}$ quedarán $N_0/4$ núcleos y así sucesivamente, tal como se muestra en la Figura 1.1. Para calcular este tiempo sustituamos $N = N_0/2$ y $t = T_{1/2}$ en la ec. (1.1), de esta manera obtenemos que $\frac{N_0}{2} = N_0 e^{-\lambda T_{1/2}}$ o $e^{\lambda T_{1/2}} = 2$. Aplicando logaritmos tenemos que $\lambda T_{1/2} = \ln 2$, es decir:

$$T_{1/2} = 0.693/\lambda \quad (1.3)$$

relaciona $T_{1/2}$ con λ permitiendo calcular las *semividas* de núcleos que van desde los 10^{-16} s hasta 10^{18} años. Igualmente podemos establecer la relación entre $T_{1/2}$, λ y τ

de la siguiente manera:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} = \ln 2\tau = 0.693\tau. \quad (1.4)$$

Ahora bien, derivando la ec. (1.1) con respecto al tiempo podemos conocer la rapidez con la que los núcleos se desintegran:

$$dN/dt = -\lambda N_0 e^{-\lambda t} = -\lambda N, \quad (1.5)$$

y afirmar que:

- ✓ La tasa de desintegración dN/dt es proporcional al número de núcleos N presentes.
- ✓ El signo menos en la ec. (1.5) indica la disminución de N con el tiempo debido a la desintegración.
- ✓ El valor absoluto $|dN/dt|$ es la *actividad* de la sustancia y se expresa en Becquerelios (Bq) que equivalen a una desintegración por segundo.

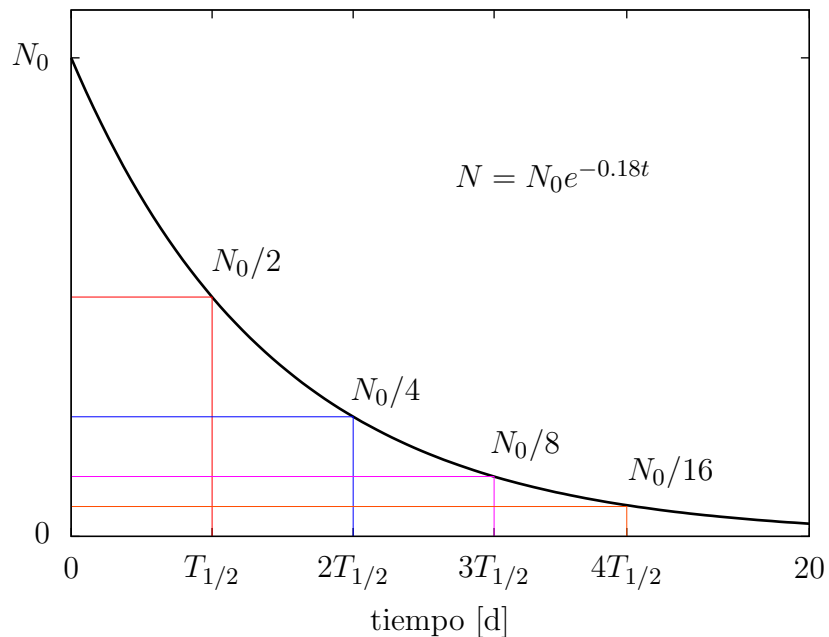


Figura 1.1: Desintegración radiactiva del ^{222}Rn con N_0 núcleos iniciales y λ de 0.18 d^{-1} .

1.3. Cadenas radiactivas naturales

Los radionúclidos en la naturaleza se encuentran distribuidos en tres cadenas radiactivas denominadas por el primer isótopo de la cadena, ellas son: *Uranio*, *Actinio* y *Torio*. Estas cadenas son una sucesión de radionúclidos cada uno de los cuales se forma por la desintegración del anterior y a su vez, éstos se desintegran dando lugar a otros, hasta llegar al último de la cadena que será estable, ver Figuras 1.2 y 1.3.

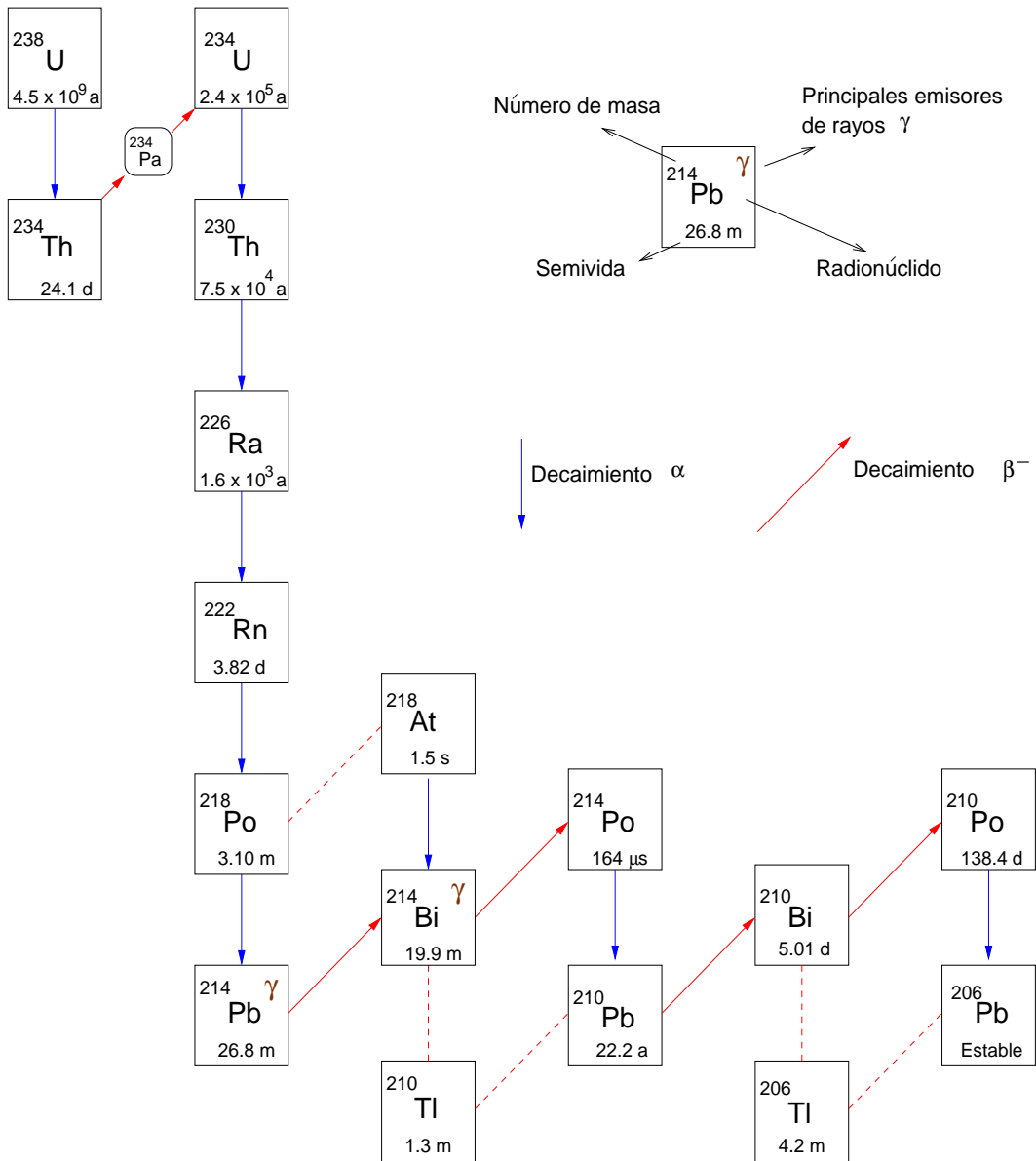


Figura 1.2: Cadena radiactiva del *Uranio*.

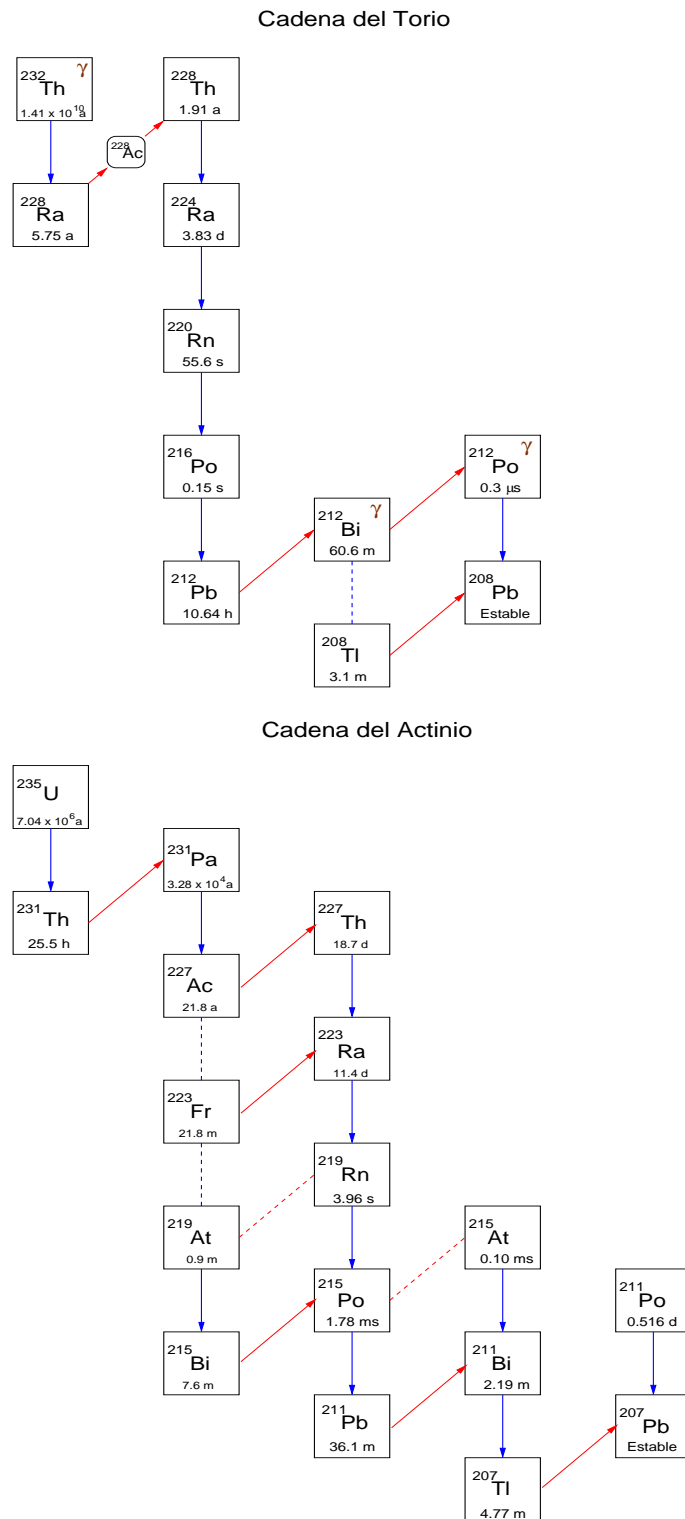
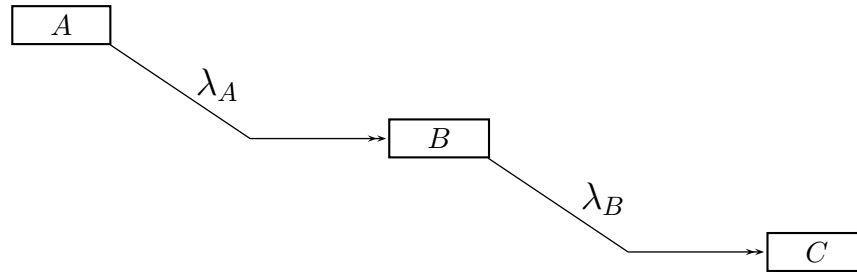


Figura 1.3: Cadenas radiactivas del *Torio* y *Actinio*.

Usando la ley de desintegración radiactiva podemos aplicar las ec. (1.1) y (1.5) a una cadena radiactiva hipotética de tres miembros representada en el siguiente esquema:



Donde la sustancia A se transmuta por desintegración radiactiva en la sustancia radiactiva B , y ésta a su vez se desintegra para formar la sustancia estable C . Si λ_A y λ_B son las *constantes de desintegración* radiactiva tenemos que la actividad de A es el valor absoluto de $dN_A/dt = -\lambda_A N_A$. Ahora, para encontrar la ecuación que define la variación de B en el tiempo, debemos tener en cuenta que los núcleos de B aumentan a expensas de la desintegración de A , pero a su vez, decae a razón de $\lambda_B N_B$ núcleos por segundo para formar la sustancia estable C , esto en lenguaje matemático se expresa como:

$$\frac{dN_B}{dt} = \lambda_A N_A - \lambda_B N_B \quad \text{ó} \quad \frac{dN_B}{dt} = \lambda_A N_{0A} e^{-\lambda_A t} - \lambda_B N_B \quad \text{y} \quad (1.6)$$

$$\frac{dN_C}{dt} = \lambda_B N_B. \quad (1.7)$$

Si $N_B = 0$ y $N_C = 0$ en $t = 0$ se satisface que:

$$N_A = N_{A0} e^{-\lambda_A t}, \quad (1.8)$$

$$N_B = \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} N_{0A} (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) \quad \text{y} \quad (1.9)$$

$$N_C = N_{A0} \left[1 + \frac{1}{\lambda_B - \lambda_A} (\lambda_A e^{-\lambda_B t} - \lambda_B e^{-\lambda_A t}) \right]. \quad (1.10)$$

Debido a que B se desintegra en una sustancia estable, es de esperar que el número de núcleos de C aumente uniformemente hasta que, después de un tiempo muy largo comparado con las semividas de A y B , el número de núcleos de la sustancia C es igual a N_{0A} . En la Figura 1.4 se muestra una gráfica que representa las ecuaciones (1.8), (1.9) y (1.10).

1.3.1. Equilibrio radiactivo

Un caso especial de la ec. (1.9) es cuando alcanza su valor máximo en el tiempo "t" (ver Fig 1.4), en el cual se ha generado la máxima cantidad de núcleos de B . En este caso el reloj del decaimiento lo controla el radionúclido padre y se dice que la cadena se encuentra en *equilibrio transitorio*, para que esto ocurra se necesita que

$$T_{1/2,A} > T_{1/2,B} \quad \text{ó} \quad \lambda_A < \lambda_B.$$

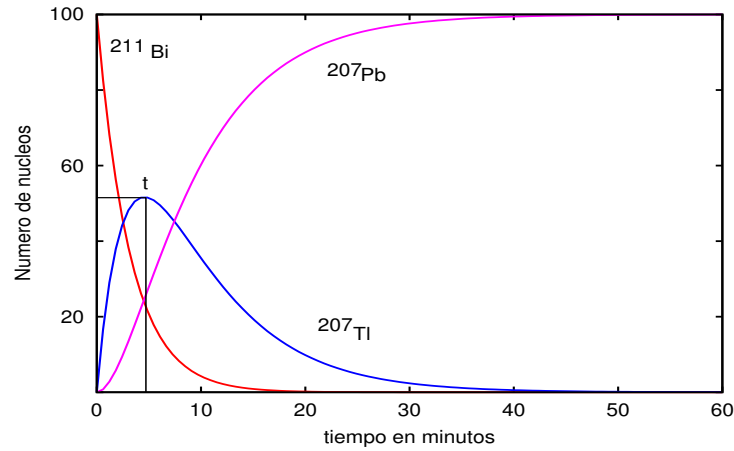


Figura 1.4: Desintegración radiactiva de los tres últimos radionúclidos de la cadena del Actinio. Donde ^{211}Bi (A) se desintegra con $\lambda = 0.316 \text{ m}^{-1}$ formando ^{207}Tl (B), éste a su vez se desintegra con $\lambda = 0.145 \text{ m}^{-1}$ para formar ^{207}Pb (C) estable.

De tal manera que la relación entre las actividades de los radionúclidos A y B es

$$\frac{\lambda_B N_B}{\lambda_A N_A} = \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} (1 - e^{-t(\lambda_B - \lambda_A)}).$$

Con las condiciones establecidas y para períodos de tiempo t del orden de 10^6 años el termino $1 - e^{-t(\lambda_B - \lambda_A)} \approx 1$ y la expresión es resumida a

$$\frac{N_A}{N_B} = \frac{\lambda_B - \lambda_A}{\lambda_A}. \tag{1.11}$$

Ahora, existe un caso especial y se da cuando la semivida del radionúclido padre es aún mucho mayor que la de su hijo, es decir

$$T_{1/2A} \gg T_{1/2B} \quad \text{ó} \quad \lambda_A \ll \lambda_B.$$

De tal manera que de la ec.(1.11) $\lambda_B - \lambda_A \approx \lambda_B$ y se obtiene que

$$\frac{N_A}{N_B} = \frac{\lambda_B}{\lambda_A} \quad \text{lo que es igual a} \quad N_A \lambda_A = N_B \lambda_B,$$

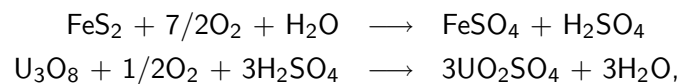
actividad de A = actividad de B .

Esta igualdad en las actividades de los radionúclidos padre e hijo significa que la cadena se encuentra en *equilibrio secular*, e indica que A se desintegra para formar B con la misma rapidez que B se desintegra para formar C . Lo anterior también puede decirse para los miembros que hacen parte de cierta cadena radiactiva expresándolo matemáticamente como:

$$N_A \lambda_A = N_B \lambda_B = N_i \lambda_i = \dots = N_n \lambda_n.$$

Sin embargo hay que tener en cuenta ciertos factores que pueden alterar la condición de equilibrio secular, entre los cuales mencionamos:

1. La emanación del gas Rn tenida en cuenta como el principal factor de desequilibrio, ya que es el único miembro de las cadenas radiactivas que se encuentra en estado gaseoso. Dependiendo de las condiciones de presión y temperatura del terreno puede liberarse o acumularse alterando las concentraciones de este gas y por consiguiente el equilibrio secular en el suelo, sin embargo, puesto que se cumple que el $T_{1/2,Rn} \gg T_{1/2,Po}$ y así con sus demás hijos, puede restablecerse el equilibrio secular dando espera a unos $7T_{1/2,Rn}$ que equivalen aproximadamente a cuatro semanas.
2. La lixiviación: El Uranio al ser lixiviado es arrastrado gradualmente a través de los diferentes perfiles del suelo, de tal manera que su concentración queda repartida a lo largo del recorrido que hace el agua (de lluvia por ejemplo) en el suelo. En el Uranio este proceso se da preferencialmente en minerales sulfurados (como la Pirita) según el siguiente mecanismo:



ya que el Sulfato de Uranilo (UO_2SO_4) a diferencia del Óxido de Uranio (U_3O_8) es muy soluble en agua (0.20 g ml^{-1}) [4].

3. El tiempo: Los padres de las cadenas radiactivas tienen tiempos de semivida del orden de 10^8 años, lo cual implica que se requiere mínimo un millón de años para alcanzar el equilibrio entre sus hijos.

1.4. El Suelo

El suelo cubre la mayor parte de la superficie terrestre, junto con el aire y el agua conforman los recursos más importantes para nosotros. Teniendo en cuenta que existen múltiples definiciones del mismo, que dependen tanto de la ciencia que lo estudie como del uso que se le de, resolvemos la siguiente pregunta de manera esencial.

1.4.1. ¿Qué se entiende por suelo?

Si nos referimos a la Tierra como un sistema, el suelo es la interfase donde interactúan la atmósfera, hidrosfera y biosfera y que está sujeta a cambios provocados por las diferentes condiciones que experimenta el entorno. Por esta razón el suelo es un sistema natural heterogéneo conformado por materia mineral y orgánica, agua y aire (Fig. 1.5), la capa que sustenta el crecimiento de las plantas.

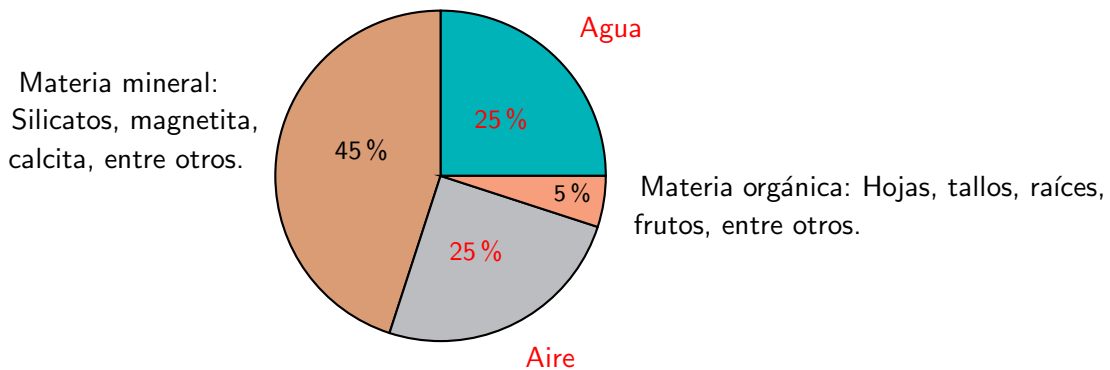


Figura 1.5: Composición volumétrica promedio del suelo.

1.4.2. Radiactividad en rocas y suelos

La principal fuente de radionúclidos en la corteza terrestre es el magma subyacente. A diferencia de un compuesto como el Agua, que cristaliza a cierta temperatura, el magma por su diversa composición química cristaliza en un intervalo de temperatura que abarca hasta 200 °C, de tal manera que a lo largo del proceso de enfriamiento y solidificación del mismo se van formando rocas ígneas que varían en su composición mineral. En las primeras etapas de la cristalización, se forman las rocas máficas, ricas en Magnesio, Hierro y con concentraciones bajas de Uranio y Torio [5], por consiguiente, el magma remanente acumula material radiactivo y en las últimas etapas de la cristalización forma rocas ricas en minerales que tienen U y Th, tales como la pechblenda. Ahora bien, los radionúclidos presentes en otros tipos de rocas como las sedimentarias y metamórficas se encuentran allí, debido a los procesos de meteorización y compactación (entre otros) que sufren las rocas ígneas.

Por otro lado, en este trabajo medimos la concentración de ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K por medio de la determinación de las cantidades de radiactividad γ del suelo. Aunque el ^{235}U es el padre de la cadena del Actinio, su contribución a la radiación γ del suelo no es tenida en cuenta ya que la abundancia isotópica de éste, es de tan solo el 0.7 % mientras que, la abundancia isotópica del ^{40}K aunque sea aún menor (de 0.0117 % , ver Cuadro 1.1.) su contribución es tenida en cuenta por ser el potasio cerca de 10^3 veces más abundante que el Uranio y el Torio en la corteza terrestre.

Fundamento teórico: La técnica y el experimento

2.1. Espectroscopía γ

Entiéndese como espectroscopía de rayos γ la técnica de análisis que se basa en la detección de este tipo de radiación con posterior elaboración de un espectro. Una de las principales aplicaciones de esta técnica es la medición de la radiactividad por medio del análisis de espectros de fuentes naturales como lo son suelos de volcanes, aguas subterráneas, sedimentos marinos etc..

Los espectrómetros más utilizados son de dos tipos: los de detección por centelleo, hechos de haluros alcalinos como el Ioduro de Sodio (NaI), o los constituidos por materiales semiconductores como el Germanio Hiperpuro (HPGe por sus siglas en inglés) o el dopado con Talio. Estos detectores van acoplados a sistemas electrónicos que son capaces de procesar los impactos de los rayos γ sobre la superficie detectora en señales interpretables.

2.1.1. ¿Qué son los rayos γ ?

A principios del siglo XX se descubrió un tipo de radiación que en 1930 el Físico Británico Ernest Rutherford llamó: “*rayos γ* ”, caracterizados principalmente por ser *radiación* altamente penetrante al requerirse materiales tan densos como el Plomo (Pb) para poderla atenuar. Actualmente se clasifican como radiación ionizante de naturaleza electromagnética, de alta frecuencia que cubren un espectro de energías que van desde los kiloelectronvoltios hasta los Megaelectronvoltios, energías convencionalmente abreviadas como keV y MeV respectivamente.

Su procedencia se explica de la siguiente manera: Así como los electrones en el átomo se encuentran en niveles discretos de energía, el núcleo es un sistema cuantizado el cual, al estar en un estado excitado “buscará” la vía más probable para pasar a un estado de menor energía a través de diferentes procesos generalmente acompañados de la emisión

de fotones γ , tal como se representa en los procesos de decaimiento del ^{40}K y ^{38}Cl en la Figura 2.1.

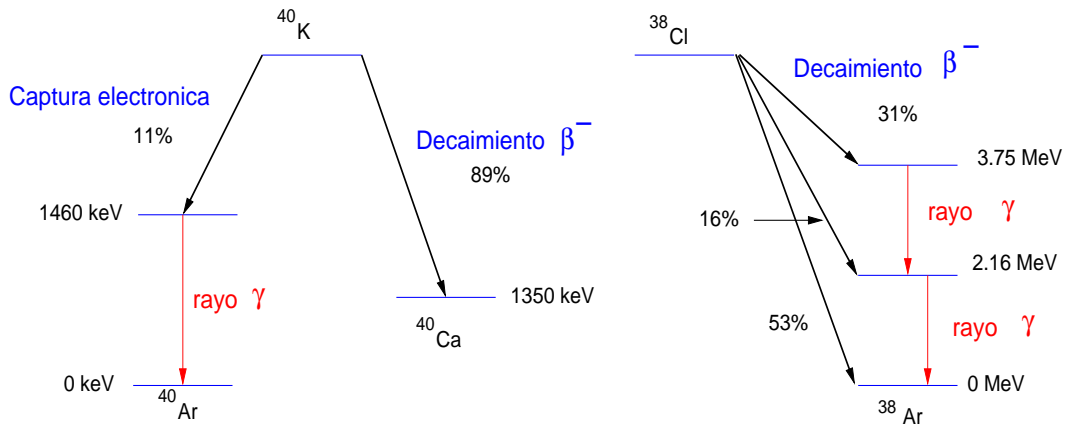


Figura 2.1: Decaimientos del ^{40}K y ^{38}Cl . Los porcentajes representan las probabilidades de que los núcleos decaigan por las diferentes vías que van seguidas de la emisión de fotones γ .

2.2. Interacción de los rayos γ con la materia

Los rayos γ interactúan con la materia a través de tres mecanismos que juegan un papel importante en su detección, ver Figura 2.2. La probabilidad de que el fotón interactúe mediante alguno de ellos depende principalmente de la energía del mismo:

- Efecto fotoeléctrico*: rayos γ de bajas energías, $E_\gamma < 0.1$ MeV.
- Efecto Compton*: domina la región de energías intermedias, $0.1 \leq E_\gamma < 1.022$ MeV.
- Producción de pares*: para rayos γ de altas energías, $E_\gamma \geq 1.022$ MeV.

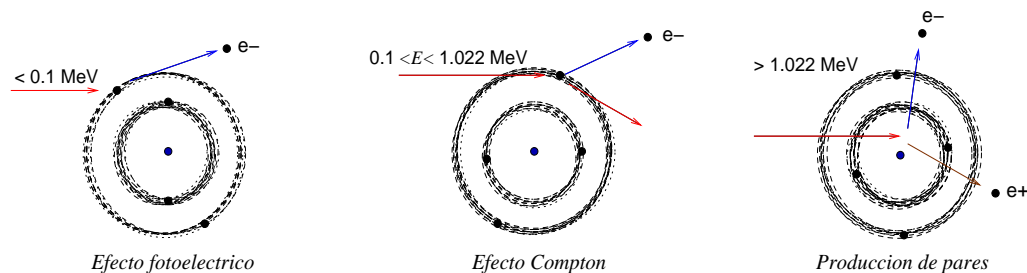


Figura 2.2: Diagramas del efecto fotoeléctrico, efecto Compton y producción de pares.

2.2.1. Efecto Fotoeléctrico

Es el proceso por el cual se emiten electrones de un material por la acción de radiación electromagnética incidente, que en nuestro caso son rayos γ de baja energía. Cuando el fotón interactúa con un electrón atómico, transfiere su energía distribuyéndola tanto en la energía necesaria para arrancar el electrón del átomo, como en la energía cinética con la que es expulsado (E_k), que será igual a la energía del fotón ($h\nu$) menos, la energía de ligadura del electrón (ϕ), es decir:

$$E_k = h\nu - \phi.$$

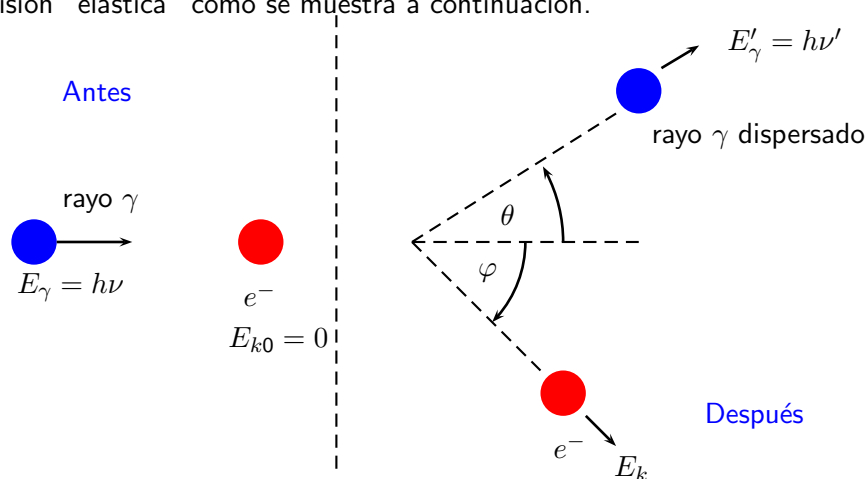
La magnitud que define la probabilidad de que ocurra el evento se denomina sección eficaz (σ) y se expresa en unidades de área. Para el efecto fotoeléctrico está descrita como:

$$\sigma_{foto} \propto \frac{Z^5}{E_\gamma^{7/2}},$$

claramente se nota que la sección eficaz depende fuertemente del número atómico del material absorbente y de la energía del fotón incidente, de tal manera que, aumenta cuando se usa como blanco materiales de Z elevado, y cuando la energía del rayo γ disminuye. Por ejemplo, si usamos como blanco Pb cuyo número atómico es 82, se requieren fotones de energías mayores a 88, 15 y 3 keV para sacar electrones de las capas K, L y M respectivamente, indicando que el efecto fotoeléctrico ocurrirá con mayor probabilidad en materiales que posean electrones en capas lejanas al núcleo (como la M), es decir, los de Z elevado.

2.2.2. Efecto Compton

Si la energía del rayo γ incidente excede la energía de ligadura de los electrones, la probabilidad de que ocurra efecto fotoeléctrico disminuye dando lugar a otro tipo de interacción denominada *Efecto Compton*, en la que un rayo γ y un electrón participan en una colisión “elástica” como se muestra a continuación.



En esta interacción el fotón cede parte de su energía al expulsar un electrón débilmente ligado, resultando a su vez dispersado con menor energía y por tanto, con menor frecuencia. El efecto Compton se puede analizar sencillamente como una colisión entre dos bolas de billar. Si llamamos E_γ y E'_γ a la energía del rayo γ antes y después de la colisión, y si la energía cinética del electrón expulsado es E_k , usando los principios de conservación y momentum:

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \epsilon(1 - \cos \theta)} \quad \text{y} \quad (2.1)$$

$$E_k = E_\gamma - E'_\gamma = E_\gamma \frac{\epsilon(1 - \cos \theta)}{1 + \epsilon(1 - \cos \theta)}, \quad (2.2)$$

donde ϵ es la energía del fotón incidente en unidades de la masa del electrón, definida como $\epsilon = E_\gamma/m_e c^2$. Si hacemos $\theta = 180^\circ$ en la ec. (2.2) obtenemos

$$E_{kmax} = E_\gamma \frac{2\epsilon}{1 + 2\epsilon}, \quad (2.3)$$

que es la energía máxima transferida al electrón y ocurre cuando el rayo γ es retrodispersado luego de la colisión, mientras que si $\theta = 0^\circ$ la $E_k = 0$ indicando que la transferencia de energía es nula.

La energía de los electrones dispersados, desde $E_k = 0$ hasta E_{kmax} es fielmente leída por el detector y genera una región en el espectro que se muestra en la Figura 2.3.

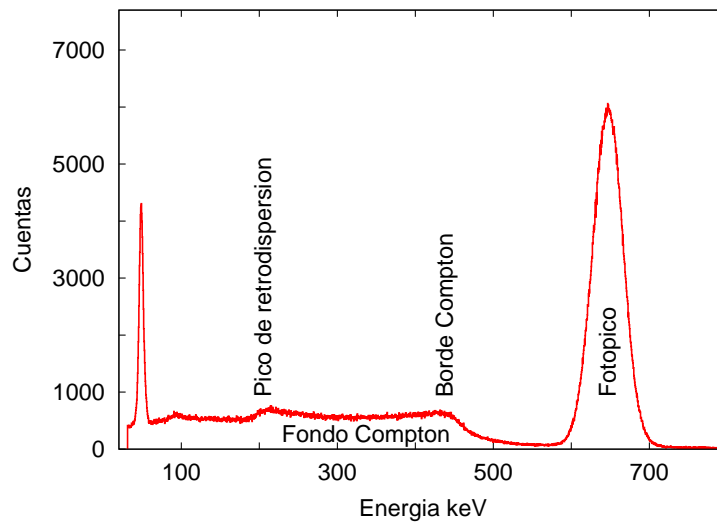


Figura 2.3: Regiones del espectro de la fuente de ^{137}Cs .

- Fondo Compton: El fotón incidente hace Compton. La energía del electrón es registrada por el detector pero el fotón dispersado escapa del detector.

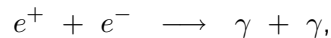
- Pico de retrodispersión: Se genera por la pérdida de energía que sufren los fotones al chocar con las paredes del detector siendo luego dispersados en ángulos cercanos a los 180°, de tal manera que cuando colisionan con la superficie detectora ya han perdido gran parte de su energía.
- Borde Compton: es generado por los electrones expulsados que surgen de eventos donde el rayo γ es retrodispersado.
- Fotopico: generado por electrones eyectados en eventos donde los fotones γ ceden la “totalidad” de su energía al material detector.

2.2.3. Producción de pares

Si la energía del fotón incidente es mayor que la energía de la masa de dos electrones en reposo es decir, $E_\gamma \geq 2m_e c^2 = 1.022 \text{ MeV}$, es posible que experimente el mecanismo de producción de pares. En el cual el rayo γ al interactuar con el campo Coulombiano generado por el núcleo, se descompone emitiendo un electrón (e^-) y un positrón (e^+) con una energía (E) que es igual a la del fotón menos, la energía de las dos partículas en reposo, es decir:

$$E = E_{e^-} + E_{e^+} = E_\gamma - 1.022 \text{ MeV}.$$

Una de las principales características de este mecanismo es que el positrón al “sumergirse en un mar de antipartículas”, electrones atómicos, se aniquila mediante el proceso



generando dos rayos γ de 0.511 MeV cada uno, que salen disparados en direcciones opuestas. Este fenómeno es fielmente registrado en casi cualquier espectro γ (Figura 2.4), ya sea porque los dos o uno de los fotones de aniquilación son detectados.

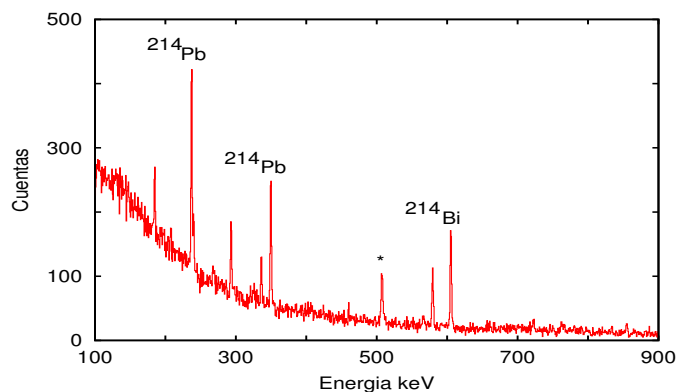


Figura 2.4: Espectro gamma de una roca radiactiva en el cual se señalan tres de los principales radionúclidos emisores de rayos γ , y el pico de aniquilación positrónica “*” en 511 keV.

2.3. Detector de Germanio Hiperpuro (HPGe)

El instrumento utilizado para medir la radiación natural fue un detector de Germanio Hiperpuro, cuyo funcionamiento se basa en la teoría de la conductividad que clasifica los sólidos según su conductividad eléctrica en:

- a) Materiales aisladores: Son pésimos conductores de la electricidad, entre ellos encontramos el Diamante y el Cuarzo.
- c) Materiales conductores: Se caracterizan por ser excelentes conductores de la electricidad, los más comunes son los metales como el Cobre y la Plata.

En el intermedio de estos dos grupos encontramos los

- b) Materiales semiconductores, que a diferencia de los metales disminuyen la resistividad eléctrica al elevarse la temperatura, entre ellos encontramos el Germanio (Ge) y el Litio (Li).

Una explicación simple de esta diferencia en la conductividad de los sólidos la ofrece la teoría de bandas representada en la Figura 2.5.

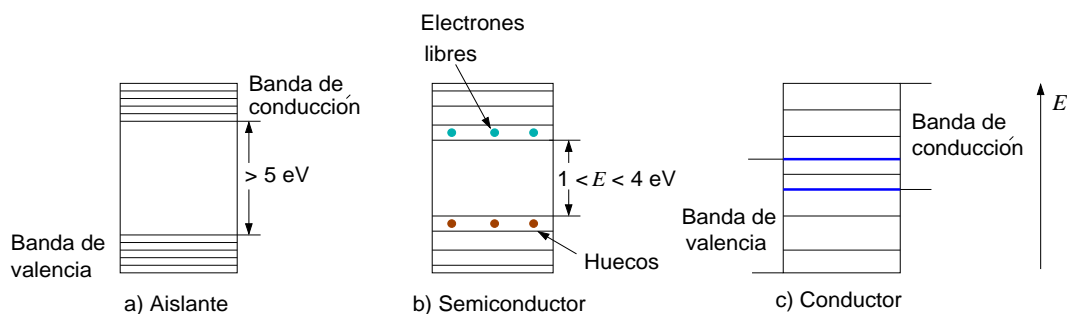


Figura 2.5: Bandas de energía de un material aislador, semiconductor y conductor.

Consideremos un metal como el Sodio (Na , $Z=11$) cuya estructura de bandas corresponde a la de un conductor, en ella podemos ver que las bandas de valencia y de conducción están superpuestas, esto se debe a que los niveles atómicos internos 1s, 2s y 2p están completamente llenos, pero la capa 3s (más externa) que puede acomodar dos electrones sólo tiene uno. Sin embargo, estos electrones desapareados por agitación térmica o bajo la acción de un campo eléctrico externo débil adquieren la suficiente energía para pasar a estados vecinos originando un movimiento colectivo a través del cristal, lo cual constituye una corriente eléctrica. En otros términos, son buenos conductores de la electricidad aquellos materiales cuya banda de valencia está semillena.

Ahora consideremos el caso de materiales que tengan la capa de valencia totalmente llena, como el Diamante. Debido a que todos los electrones de la banda de valencia están apareados, la energía de los mismos está "restringida", lo cual, impide que los electrones cambien de estado sin violar el principio de exclusión. La vía para promover

los electrones a la banda de conducción es aplicando un campo eléctrico que supere los 5 eV tal como se muestra en la Figura 2.5.

Finalmente en la Figura 2.5b podemos ver la estructura de bandas de los semiconductores y notar que el espaciamiento entre las bandas es mucho menor (0.7 y 1.1 eV en el Ge y en el Si), haciendo más fácil la excitación de electrones de la banda de valencia a la banda de conducción. Una de las características más importantes de estos materiales es que la conductividad aumenta rápidamente con la temperatura debido a que más electrones son promovidos a la banda de conducción, siendo esta la razón por la cual el detector HPGe se opera a la temperatura del Nitrógeno (N_2) líquido, con el fin de evitar la excitación de electrones por mecanismos diferentes a las interacciones rayo γ - semiconductor.

Por ejemplo: en el Si el número de electrones excitados se incrementa en un factor de 10^6 cuando la temperatura aumenta de -23 a 177 °C haciendo que se comporte como un metal en términos de conductividad.

2.3.1. Sistema de detección

Entiéndese por sistema de detección el conjunto completo de equipos que incluye, además del detector, instrumentos electrónicos y el software analizador, dicho sistema se muestra en el siguiente diagrama.

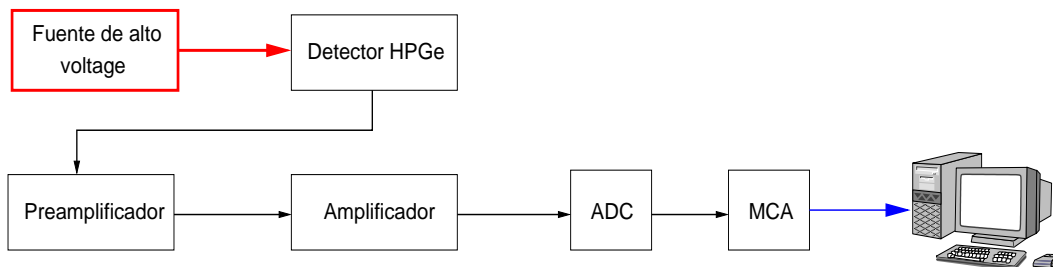


Figura 2.6: Diagrama de bloques del sistema de detección. Las flechas indican el viaje que hace la señal, que finaliza cuando se registra ya procesada en el computador.

Cada una de sus partes se define como:

- **Fuente de alto voltaje:** Fuente de energía externa que alimenta el detector HPGe, en nuestro caso son 3500 V.
- **Detector HPGe:** Explicado en la sección anterior.
- **Preamplificador:** Es un dispositivo electrónico de reducidas dimensiones que se encuentra adyacente al detector, el cual facilita la transmisión de los pulsos de detección a los siguientes equipos de procesado...

- **Amplificador:** Instrumento encargado de recibir y amplificar las señales eléctricas (aumentando su voltaje) provenientes del preamplificador.
- **Convertor Análogo Digital (ADC):** Equipo que transforma las señales analógicas de voltaje en un valor digital.
- **Analizador Multicanal (MCA):** Dispositivo encargado de analizar la distribución compleja de pulsos de voltaje, clasificarlos y distribuirlos en múltiples canales según su amplitud.
- **Computador:** A través de éste se visualizan las señales debidamente procesadas y registradas en el espectro.

2.3.2. Registro de los rayos γ

Básicamente los rayos γ se registran en un espectro de la siguiente manera:

1. Los electrones expulsados del material detector por los rayos γ son recolectados mediante la aplicación de un campo eléctrico, que como mencionamos anteriormente es de 3500 V.
2. La señal de salida del detector al ser amplificada es convertida en pulsos de voltaje que el **ADC** se encarga de clasificarlos según su amplitud (energía) tal como se muestra en la Figura 2.7.

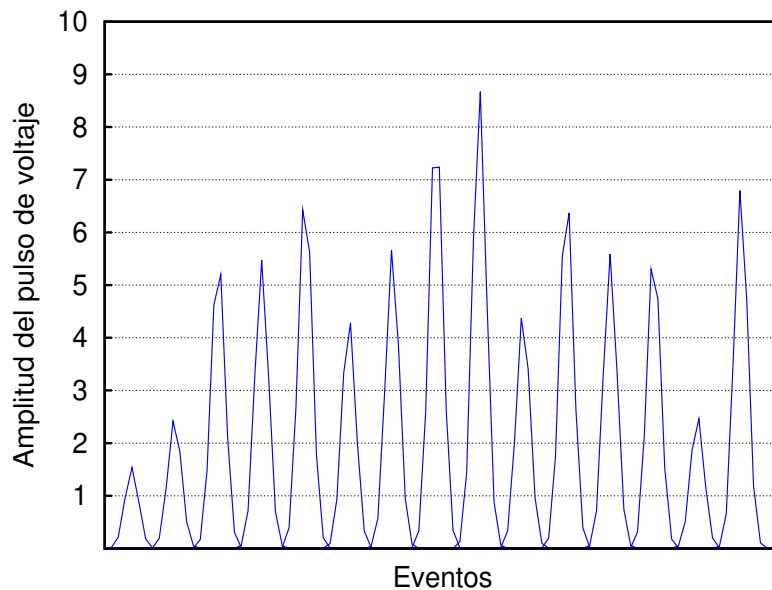


Figura 2.7: Señal proveniente del amplificador. El eje de las ordenadas ha sido dividido en diez partes (trabajo del **ADC**) de tal manera que se clasifican los pulsos de voltaje según su amplitud.

3. El **MCA** se encarga de distribuir los pulsos que caigan dentro de las divisiones hechas por el **ADC** en canales, y el número de eventos según la amplitud en cuentas. El trabajo del MCA se representa en la Figura 2.8.

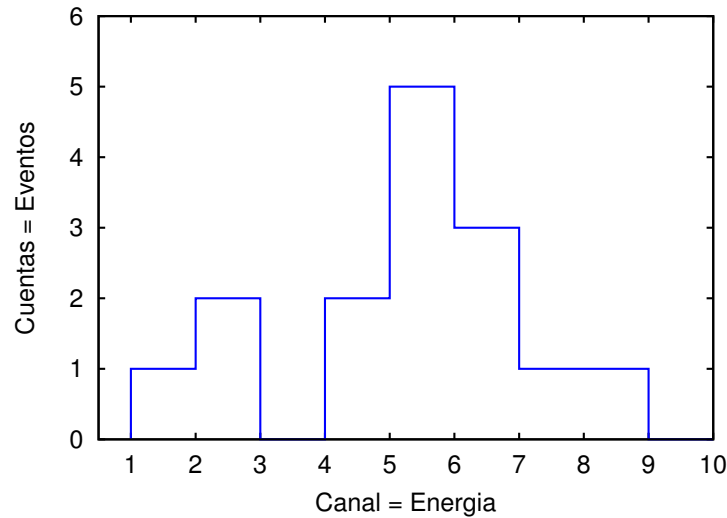


Figura 2.8: Distribución hecha por el **MCA**, en la cual las divisiones en energía hechas por el **ADC** se convierten en canales, y el número de eventos en cuentas.

2.3.3. Características generales del detector

A continuación se hace una breve descripción de las características generales de un detector:

- a) **Sensibilidad:** Definida como la capacidad del sistema de detección para procesar una señal útil dada cierta radiación de energía E . Ésta depende principalmente de la sección eficaz de la interacción, de la masa y el ruido interno del detector, y del material que lo protege.
- b) **Respuesta:** La respuesta de un detector tiene que ver con el tipo de señal que genera luego de la interacción radiación-materia, y relaciona la ionización producida en la masa detectora con la energía de la radiación incidente.
- c) **Resolución energética:** Capacidad del detector para distinguir señales de energías cercanas como diferentes y registrarlas en el espectro, se mide a través de la anchura del pico a la mitad del mismo (FWHM por sus siglas en inglés) descrita matemáticamente como

$$\text{FWHM} = \frac{\Delta E}{E},$$

y evalúa la anchura como un porcentaje de energía del pico respectivo. Sin embargo, la anchura también puede ser evaluada en picos que han sido ajustados a gaussianas como en la Figura 2.9

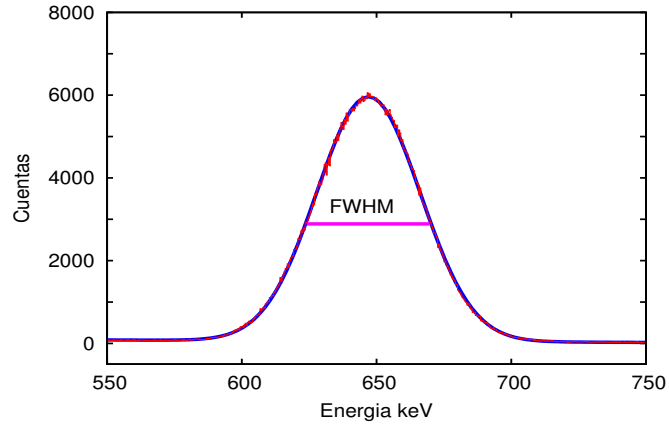


Figura 2.9: Pico de la fuente de ^{137}Cs ajustado a una ecuación gaussiana representada con color azul, la línea fucsia indica el FWHM. El espectro se tomó usando el detector de NaI.

Donde

$$\text{FWHM} = 2.35\sigma, \quad (2.4)$$

y σ es la desviación estándar de la función gaussiana.

La resolución depende principalmente del porcentaje de energía de radiación absorbida por el detector, es así, que un detector de NaI posee baja resolución comparada con la de un HPGe, tal como lo revelan los espectros de la Figura 2.10.

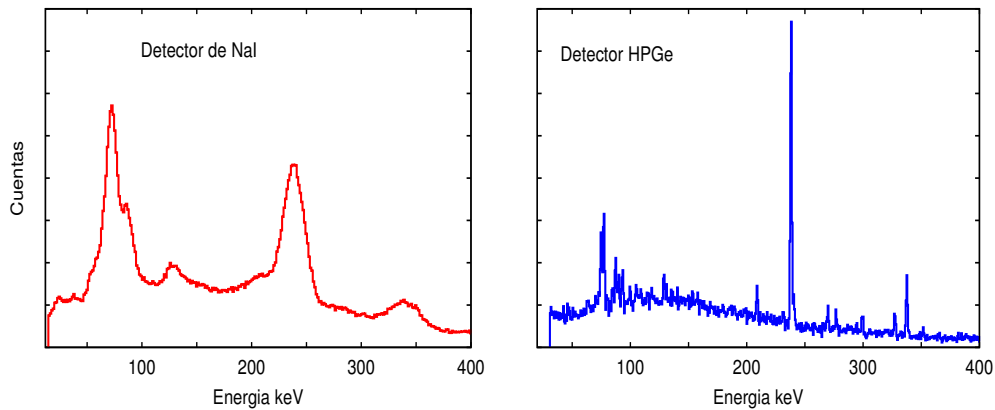


Figura 2.10: Espectros de la fuente de Th. Se observa claramente un FWHM mayor en el espectro tomado con el detector de NaI que con el HPGe.

- d) **Eficiencia:** Se define como la razón entre el número de fotones detectados y el de los que incidieron sobre el detector en un intervalo de tiempo. La eficiencia es una cantidad útil para conocer la capacidad del instrumento para detectar radiación. En la sección 2.5 comentaremos acerca de la eficiencia relativa, que define la probabilidad de detección en función de la energía.
- e) **Tiempo de respuesta:** Es el tiempo que transcurre desde que el fotón impacta el detector hasta que la señal se procesa en una medida interpretable.

2.4. Ajuste de espectros

Los picos obtenidos en los espectros aparecen inicialmente como histogramas, estos histogramas se ajustan a una función $H(x)$ definida por la suma de una gaussiana y una línea recta,

$$G(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}}e^{-(x-\mu)^2/2\sigma^2}, \text{ en la práctica } g(x) = Ae^{-(x-\mu)^2/2\sigma^2} \text{ y}$$

$$\text{en el ajuste de picos } H(x) = Ae^{-(x-\mu)^2/2\sigma^2} + b_1x + b_2, \quad (2.5)$$

donde A es la amplitud, μ el centroide y σ la desviación estándar de la gaussiana, b_1 y b_2 son los parámetros de la línea recta. De tal manera que la gaussiana ajusta el histograma y la recta ajusta la línea base del pico. En Figura 2.11 se muestra el ajuste del espectro de la fuente de ^{57}Co .

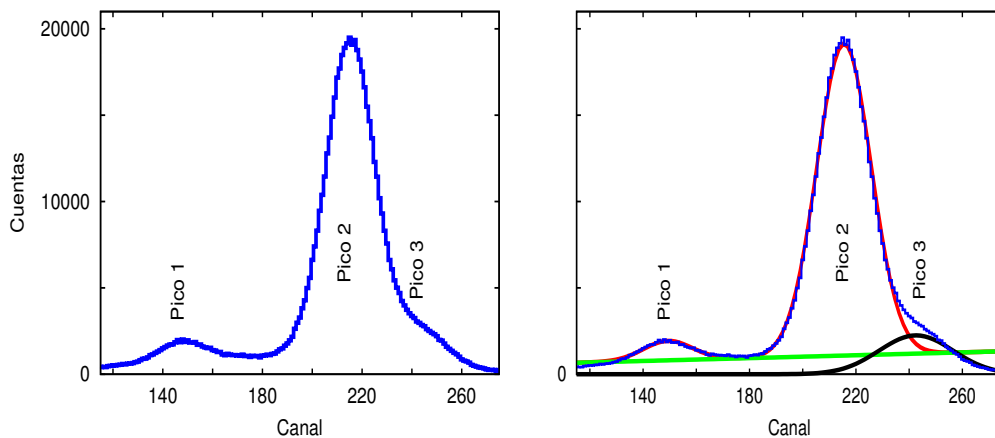


Figura 2.11: A la izquierda tenemos el histograma del espectro de la fuente de ^{57}Co , y a la derecha los ajustes usando una función basada en la ec. (2.5).

El ajuste de los picos a funciones gaussianas tiene sus ventajas, ya que sustituyendo σ

en la ec. 2.4 se calcula el FWHM, A y σ junto con el concepto de integral normalizada:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} G(x) = 1,$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} g(x)dx = \int_{-\infty}^{+\infty} A\sigma\sqrt{2\pi}G(x)dx = A\sigma\sqrt{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} G(x)dx = A\sigma\sqrt{2\pi}, \quad (2.6)$$

arrojan la ec. (2.6) que corresponde al área del pico y consecuentemente a la intensidad del mismo, finalmente μ se usa para hacer la calibración en energía que se explicará en la siguiente sección.

2.5. Calibración del detector

En el ejercicio de la espectroscopía γ se deben llevar a cabo dos tareas previas a la toma y análisis de espectros. Dichas tareas son:

- ✓ Calibrar en energía.
- ✓ Calibrar en eficiencia.

Y consisten en:

2.5.1. Calibración en energía

Puesto que el MCA clasifica las energías de los rayos γ en canales a lo largo del eje de las abscisas en los espectros, se hace necesario conocer la energía que le corresponde a cada canal, y eso es lo que busca la *calibración en energía*. El proceso habitual es tomar un espectro de una fuente de referencia, tal como lo es la fuente mixta de Europio (Eu) que se caracteriza por emitir fotones de múltiples energías, y asignarle a cada pico registrado en cierto canal un valor de energía según los radionúclidos de Eu reportados en [6]. Una vez se ha caracterizado el espectro se establece la gráfica de calibrado, que relaciona justamente los canales con la energía a través de la ecuación de una línea recta,

$$y = mx + b \iff E = mC + b,$$

donde en el eje y se ubican los valores de energía y en el x los canales. El proceso de calibrar en energía es imprescindible para analizar espectros de rayos γ , pues depende de ella la asignación correcta de radionúclidos en los espectros de las muestras.

2.5.2. Calibración en eficiencia

Antes de explicar el proceso de calibración debemos conocer el concepto de eficiencia relativa (o simplemente eficiencia). El cual define la probabilidad de detección de rayos γ como una función de la energía, $\varepsilon(E_\gamma)$. Teniendo en cuenta que la probabilidad de detección depende de la geometría de la muestra, es decir, del tamaño, densidad y distancia al detector, analizar muestras que se almacenan en recipientes de diferentes

geometrías requeriría así mismo de diferentes calibraciones en eficiencia; sin embargo, esto puede evitarse usando materiales de referencia que conserven la misma geometría y que sean emisores de rayos γ de múltiples energías, de tal manera que la información obtenida en los espectros se usa para calcular una serie de coordenadas (E_γ, ε) por medio de la ecuación

$$\varepsilon(E_\gamma) = \frac{I(E_\gamma)}{T b(E_\gamma) A(Z, N; t)}, \quad (2.7)$$

donde $I(E_\gamma)$ es la intensidad calculada usando la ec (2.6) que al dividirla por el tiempo de medida T queda expresada en [cuentas s^{-1}], $b(E_\gamma)$ indica la probabilidad de decaimiento nuclear por cierto mecanismo, en la Figura 2.1 se observan dichas probabilidades representadas como porcentajes, y $A(Z, N; t)$ es la actividad del patrón en Bq al día que se use.

Materiales de referencia

Los materiales de referencia usados para hacer las calibraciones en eficiencia son los otorgados por la International Atomic Energy Agency (I.A.E.A.). Estos patrones han sido destinados para analizar suelos, rocas, sedimentos, etc. a través de espectroscopía de rayos γ , y están constituidos por mezclas minerales en polvo almacenadas en botellas de 500 ml de Polietileno (PE), es por esta razón que no utilizamos la fuente mixta de Eu para calibrar en eficiencia ya que dicha fuente, a diferencia de los materiales de referencia, se encuentra depositada en el centro de un disco plástico de aproximadamente 5 cm de diámetro.

1. RGU-1: Corresponde a una mezcla de un mineral uranífero de alta pureza química disuelto en una matriz de Sílice. Una característica importante es que se encuentra en estado de equilibrio secular con respecto a la cadena del ^{238}U y emite fotopicos a 295, 352, 609, 1120 y 1764 keV de energía.
2. RGTh-1: Este material ha sido preparado a partir de mineral de britolita cuyo porcentaje de Th es elevado. Se encuentra en estado de equilibrio secular con respecto a la cadena del ^{232}Th y emite fotopicos a 583, 911, 968 y 2614 keV de energía.
3. RGK-1: Material hecho de Sulfato de Potasio de alta pureza química. El ^{40}K es detectado a través de los fotones γ que emite el ^{40}Ar quien es su único producto de decaimiento, ver Figura 2.1.

Vale la pena mencionar que estos materiales han sido sometidos a rigurosos análisis en múltiples laboratorios que evalúan tanto el grado de homogeneidad como las concentraciones de los mismos, las cuales reportamos en el Cuadro 2.1.

Cuadro 2.1: Concentraciones de U, Th y K en los materiales de referencia, se han calculado tomando como base la masa de las sustancias en seco. Más información en [7].

Componente	Concentración	Actividad Bq kg ⁻¹	Densidad g cm ⁻³
	RGU-1 en ppm		
Uranio	400 ± 2	4950 ± 30	1.473 ± 0.003
Torio	< 1		
Potasio	< 20		
	RGTh-1 en ppm		
Torio	800 ± 16	3250 ± 90	1.339 ± 0.001
Uranio	6.3 ± 0.4		
Potasio	0.02 ± 0.01		
	RGK-1 en %		
Potasio	44.8 ± 0.3	14000 ± 400	1.414 ± 0.003
Uranio	< 0.001 ppm		
Torio	< 0.1 ppm		

2.6. Análisis cuantitativo

En esta sección se exponen las magnitudes que hay que calcular para hacer el análisis cuantitativo de los radionúclidos presentes en las muestras, las cuales dependen tanto de las calibraciones en energía como de eficiencia.

2.6.1. Actividad específica

La actividad específica (\bar{A}) definida como el número de desintegraciones por segundo y por unidad de masa, expresada en Bq kg⁻¹, se calcula usando la ecuación

$$\bar{A} = \frac{I(E_\gamma)}{T b(E_\gamma) \varepsilon(E_\gamma) M_{ss}} \quad (2.8)$$

que incluye el nuevo termino M_{ss} que representa la masa seca de la muestra de suelo analizada. Las actividades de los padres ²³²Th y ²³⁸U al considerar la condición de equilibrio secular se toman como el promedio de las actividades específicas de cada uno de sus hijos caracterizados en el espectro; esto no ocurre con el ⁴⁰K puesto que decae generando ⁴⁰Ar, que al ser un radionúclido estable impide que se establezca cualquier condición de equilibrio radiactivo.

2.6.2. Concentración elemental

Una vez obtenemos las actividades específicas del ²³²Th, ²³⁸U y ⁴⁰K pasamos a calcular las concentraciones elementales (C_e) de los mismos usando:

$$C_e = \frac{\bar{A}M_a}{\lambda_E N_A f_E} K \quad (2.9)$$

$$\text{para el elemento } E = \begin{cases} M_a & : \text{Masa atómica en kg mol}^{-1} \\ f_E & : \text{Abundancia isotópica en fracción} \\ \lambda_E & : \text{Constante de decaimiento en s}^{-1} \\ N_A & = 6.022 \times 10^{23} \text{ núcleos / mol} \end{cases}$$

y K es una constante de 1×10^6 o 100 para reportar la concentración en partes por millón (ppm) o en porcentaje (%) respectivamente. Teniendo en cuenta que la concentración en ppm o en % expresa que hay un número de partes (masa) de un soluto diluida en un millón o en cien partes (masa) de disolvente respectivamente, podemos deducir la ecuación 2.9 de la siguiente manera: el cociente

$$\frac{\bar{A}}{\lambda_E} \quad (2.10)$$

da el número de núcleos del radionúclido E (N_E) por kg de muestra en un tiempo t , ahora bien, puesto que necesitamos saber la masa de los núcleos N_E planteamos el cociente M_a/N_A que arroja la masa de una mol de átomos de E que al dividirlo por la f_E , es decir $M_a/(N_A f_E)$, aseguramos que la masa por mol resultante corresponde a la del radionúclido E . Al multiplicar la ecuación 2.10 por el cociente anterior se obtiene

$$\frac{\bar{A}}{\lambda_E} \left(\frac{M_a}{N_A f_E} \right) \text{ cuyo análisis dimensional } \frac{\text{núcleos} \frac{\text{kg}}{\text{mol}}}{\text{Kg} \frac{\text{núcleos}}{\text{mol}}}$$

daría como resultado valores adimensionales que al ser multiplicados por la constante K se obtienen en ppm o en % según sea el caso, normalmente las concentraciones de ^{238}U y ^{232}Th se expresan en ppm y las de ^{40}K en %.

2.7. Magnitudes dosimétricas

Teniendo en cuenta que todos los organismos vivos están expuestos a radiaciones ionizantes provenientes de los rayos cósmicos, de la corteza terrestre, de los materiales de construcción e inclusive de los alimentos que consumimos, presentamos dos magnitudes dosimétricas útiles para evaluar los efectos de la radiación absorbida:

- a) Dosis absorbida D : Estima la energía que deposita cualquier radiación ionizante sobre un material al atravesarlo. La unidad del sistema internacional (SI) que representa esta magnitud es el Gray (Gy), equivalente a la absorción de 1 julio por kilogramo.

$$1 \text{ Gy} = 1 \text{ J kg}^{-1}. \quad (2.11)$$

- b) Dosis efectiva E : La dosis efectiva evalúa el daño biológico que producen las radiaciones en el cuerpo. Matemáticamente corresponde a la suma de las dosis equivalentes ponderadas en todos los tejidos y órganos del cuerpo, es decir

$$E = \sum H_T W_T,$$

donde H_T es la dosis equivalente, que en otras palabras corresponde a la dosis absorbida en el tejido T y W_T es el factor de ponderación correspondiente al mismo tejido. La dosis efectiva se mide en rem (Roentgen Equivalent Man) o Sievert (Sv), según el SI $1 \text{ Sv} = 100 \text{ rem}$, sin embargo para radiación γ

$$1 \text{ Gy} = 1 \text{ Sv} = 1 \text{ J kg}^{-1}. \quad (2.12)$$

Tanto la dosis absorbida como la efectiva se pueden calcular a través de las siguientes ecuaciones, donde

$$D(\text{nGy h}^{-1}) = 0.462\bar{A}_U + 0.604\bar{A}_{Th} + 0.0417\bar{A}_K, \quad (2.13)$$

estima la energía depositada por los rayos γ al atravesar el aire a un metro de distancia del suelo, y

$$E(\text{mSv a}^{-1}) = D(\text{nGy h}^{-1}) \times 8760 \text{ h} \times 0.2 \times 0.7 \text{ Sv Gy}^{-1} \times 10^{-6} \quad (2.14)$$

hace uso de la D obtenida en la ecuación 2.13 para calcular la dosis efectiva. Las ecuaciones 2.13 y 2.14 utilizadas en [8, 9] son los resultados reportados en [18] obtenidos al llevar a cabo simulaciones de la interacción rayo γ - materia usando el método Monte Carlo.

2.8. El experimento

El procedimiento experimental realizado consta de dos etapas que se diseñaron teniendo en cuenta las recomendaciones reportadas en [8, 9, 10, 11] incluídas a continuación.

2.8.1. Colección y tratamiento de las muestras

Las muestras de suelo se colectaron en diferentes zonas del país, que incluyen tanto relieves montañosos como sistemas costeros, se tomaron a 80 cm de profundidad reuniendo cerca de 2 kg de suelo por cada una de ellas. En el mapa de la Figura 2.12 se indican las zonas de donde se colectaron las muestras. Sin embargo, para ser más específicos aclaramos que corresponden a bosques no intervenidos en el municipio de Nemocón, Pamplona, Cúcuta, a la UNAL sede Bogotá y a una playa de la Isla de San Andrés.



Figura 2.12: Zona de toma de muestras.

El tratamiento de las muestras se resume en tres etapas, las cuales implican

1. Homogenización al pasarlas por un tamiz de tamaño de malla de 1 mm, esto con el fin de mantener una semejanza del tamaño de grano de las muestras con el de los materiales de referencia.
2. Posteriormente se secan usando un horno a una temperatura de 110 °C durante 24 h.
3. Finalmente se almacenan en botellas de 500 ml de PE durante un período de tiempo mínimo de cuatro semanas durante el cual se alcanzan a generar los radionúclidos de vida corta, como el ^{214}Bi de $T_{1/2} = 19.9$ m, de tal forma que garanticen la condición de equilibrio secular.

2.8.2. La medición espectroscópica

El montaje experimental usado en las mediciones es el representado en la Figura 2.13, el cual contiene todas las partes comentadas en la sección 2.3.1, e incluye un blindaje hecho de Pb de alta pureza que reduce considerablemente el fondo de radiación natural. Para tomar cualquier espectro usando el detector HPGe es necesario mantenerlo frío, es decir a -185 °C y para ello se llena aproximadamente cada quince días con N_2 líquido.

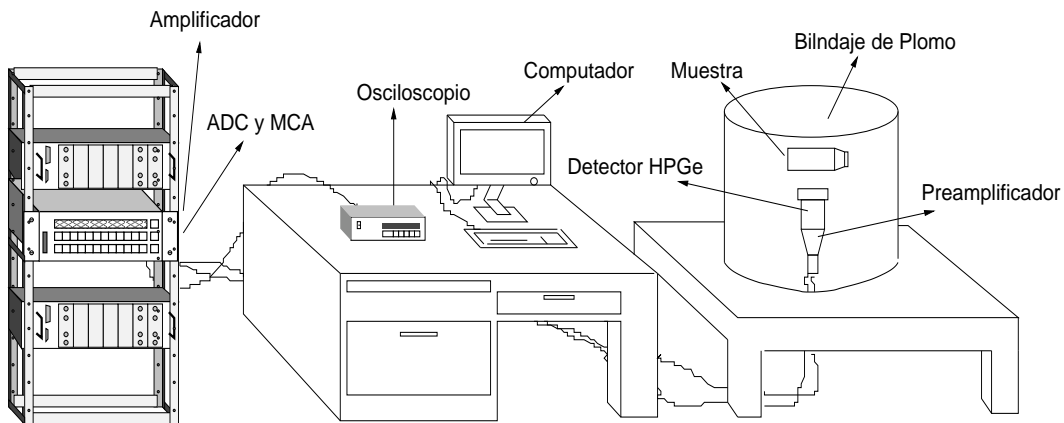


Figura 2.13: Montaje experimental de detección de radiación gamma.

Antes de comentar detalles acerca de la medición espectroscópica vale la pena aclarar que: Al principio y al final de cada medición hecha, se toman espectros de la fuente mixta de Eu durante cinco minutos con el fin de comprobar las similitudes entre las calibraciones en energía, esto indica que durante la medida no han ocurrido anomalías electrónicas del sistema de detección.

Las mediciones espectroscópicas fueron tomadas en el siguiente orden:

1. Espectros de los materiales de referencia del I.A.E.A. tomados durante una hora. Con ellos se hicieron las calibraciones en eficiencia.
2. Espectro del fondo de radiación natural tomado durante dos días. No se pone muestra alguna dentro del blindaje de Pb.
3. Espectros de las muestras de suelo previamente tratadas tomados durante dos días.

Presentamos este capítulo en el orden cronológico que se llevaron a cabo las actividades que condujeron a la obtención y análisis de resultados.

3.1. Tratamiento de las muestras

Las muestras analizadas, según la sección 2.5.2, deben conservar al máximo la geometría que conforman los materiales de referencia. Es por esta razón que trabajamos con muestras de suelo tamizado a 1 mm, las cuales sometimos a un proceso de secado con el fin de evitar que el tamaño de la matriz varíe por fenómenos de expansión o contracción, dados según el contenido de agua presente en ellas [12]. El contenido de agua expresado en porcentaje ($\%H$) se calculó en base a la masa de suelo seco usando la siguiente expresión:

$$\%H = \frac{m_{sh} - m_{ss}}{m_{ss}} \times 100,$$

donde m_{sh} y m_{ss} son la masa de suelo húmedo y seco respectivamente. En el Cuadro 3.1 se muestran los resultados del proceso de secado.

Cuadro 3.1: Porcentajes de humedad y densidades basadas en la masa seca de cada una de las muestras.

Muestra	Masa $m_{ss} \pm 1$ g	Humedad $\%H$	Densidad [g cm ⁻³]
Bogotá - UNAL	337	47.57(1)	0.838(2)
Pamplona	354	18.625(6)	1.377(4)
Nemocón	467	13.413(3)	1.012(1)
Cúcuta	432	12.591(4)	1.451(3)
San Andrés Islas	704	9.515(5)	1.390(1)

Tal como comentamos en la sección 2.8.1 almacenamos las muestras durante seis semanas, durante ese tiempo llevamos a cabo las calibraciones del detector presentadas a continuación.

3.2. Espectros de calibración

3.2.1. En energía

Los datos para hacer las calibraciones en energía fueron tomados de los espectros de la fuente mixta de Eu. En la Figura 3.1 se muestran dos espectros típicos de dicha fuente y en los Cuadros 3.2 y 3.3 los radionúclidos caracterizados.

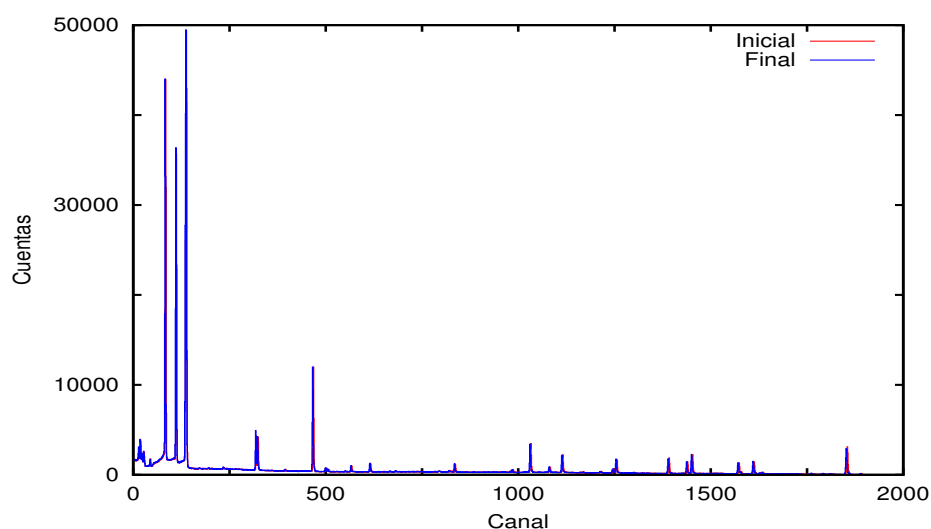


Figura 3.1: Espectros de la fuente de Eu tomados al inicio (rojo) y final (azul) de tomar el espectro de fondo.

Cuadro 3.2: Datos del espectro inicial de Eu, A corresponde al número de masa.

Canal C	Energía E keV	^AEu	Canal C	Energía E keV	^AEu
84.228(7)	86.548(1)	155	1256.32(2)	873.183(2)	154
112.127(4)	105.308(1)	155	1391.91(2)	964.07(2)	152
137.87(1)	123.0706(9)	154	1439.92(3)	996.262(6)	154
324.31(1)	247.9288(1)	154	1452.65(2)	1004.725(7)	154
467.78(1)	344.278(5)	152	1573.67(6)	1085.84(6)	152
1032.79(1)	723.301(2)	154	1612.78(6)	1112.076(3)	152
1082.67(8)	756.802(2)	154	1855.02(4)	1274.429(4)	154

Cuadro 3.3: Datos del espectro final de Eu (azul).

Canal C	Energía E keV	^AEu	Canal C	Energía E keV	^AEu
83.260(5)	86.548(1)	155	1254.24(3)	873.183(2)	154
111.097(5)	105.308(1)	155	1389.70(3)	964.07(2)	152
136.81(2)	123.0706(9)	154	1437.66(3)	996.262(6)	154
318.19(1)	247.9288(1)	154	1450.32(2)	1004.725(7)	154
466.277(8)	344.278(5)	152	1571.27(7)	1085.84(6)	152
1030.78(1)	723.301(2)	154	1610.38(6)	1112.076(3)	152
1080.62(9)	756.802(2)	154	1852.44(4)	1274.429(4)	154

Al representar los datos de los cuadros anteriores como (C, E) en un sistema de ejes coordenados Canal - Energía y al ajustarlos a la ecuación de una línea recta obtuvimos lo representado en la Figura 3.2.

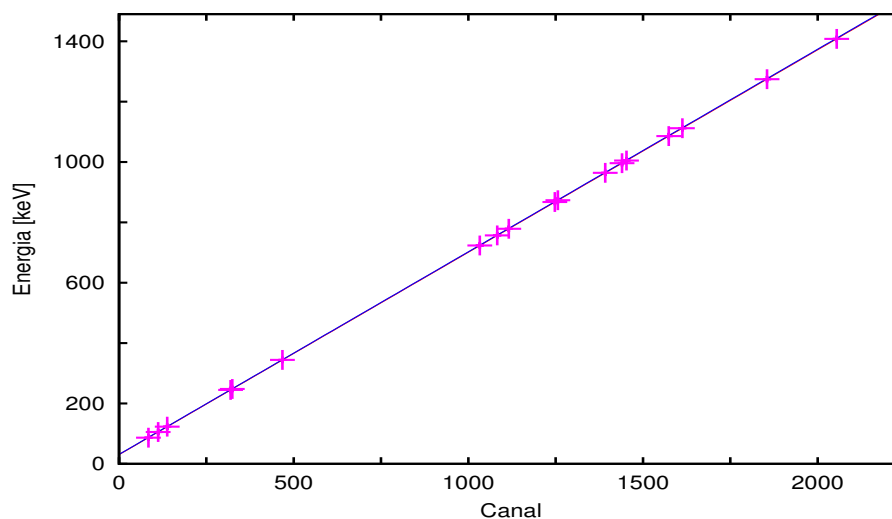


Figura 3.2: Rectas de calibración solapadas usando los datos de los Cuadros 3.2 y 3.3.

Las ecuaciones de las rectas que corresponden a los datos iniciales y finales son:

$$E = 0.6706(7)C + 30.49(8) \text{ y } E' = 0.6712(8)C' + 31.19(9), \quad (3.1)$$

respectivamente. Esta calibración en energía nos revela dos aspectos útiles para el análisis de los espectros:

1. Puesto que todos los espectros tomados de la fuente de Eu coinciden como lo hacen los de la Figura 3.1, se puede usar cualquiera de las ecuaciones 3.1 para hacer las caracterizaciones.

2. Los solapamientos de los espectros iniciales y finales junto con las similitudes entre las ecuaciones de calibración, nos indica que no hubo modificaciones considerables en la electrónica del sistema de detección que provocaran corrimientos en los espectros.

3.2.2. En eficiencia

Una vez obtuvimos la calibración en energía pasamos a calcular la capacidad de detección del HPGe en un rango de 50 a 2700 keV de energía, que es un rango típico para rayos γ terrestres. Para ello tomamos espectros de los materiales de referencia ilustrados en las Figuras 3.3 y 3.4, y calculamos las eficiencias usando la ec. (2.7).

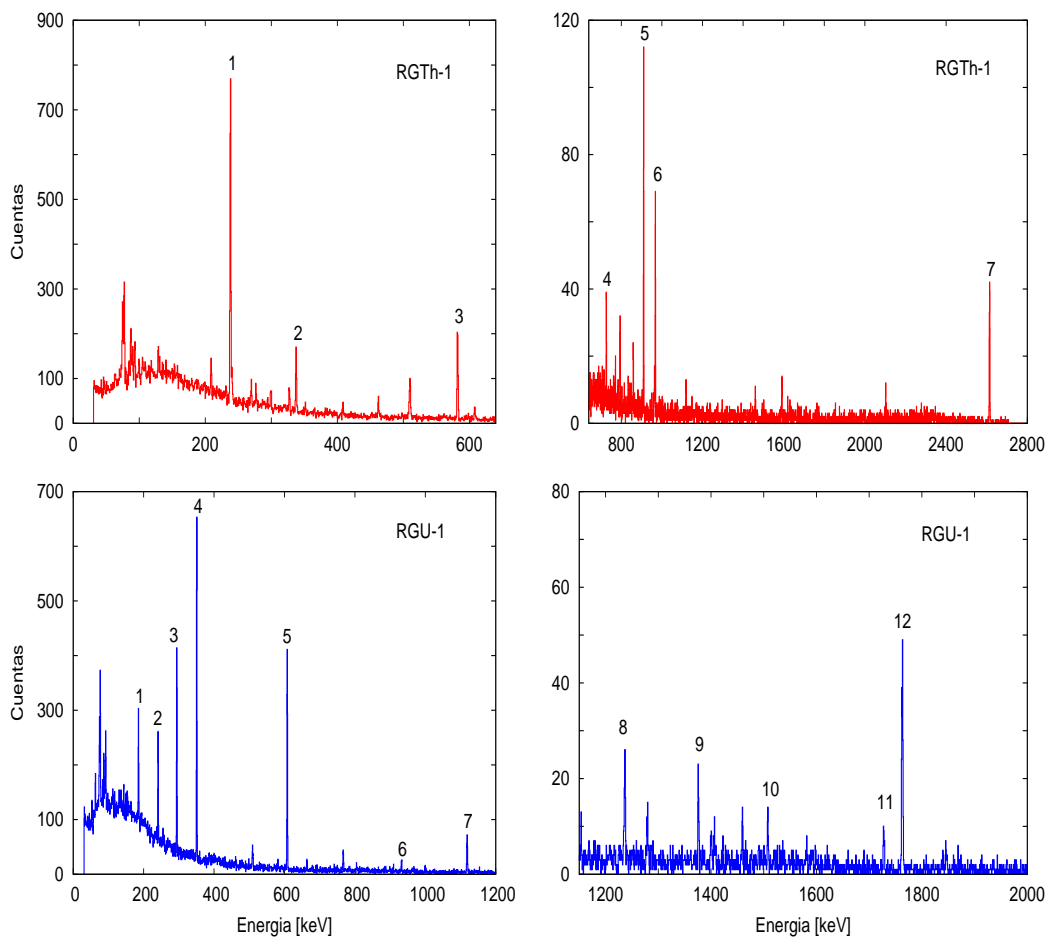


Figura 3.3: Espectros de los patrones RGTh-1 (rojo) y RGU-1 (azul) tomados durante una hora.

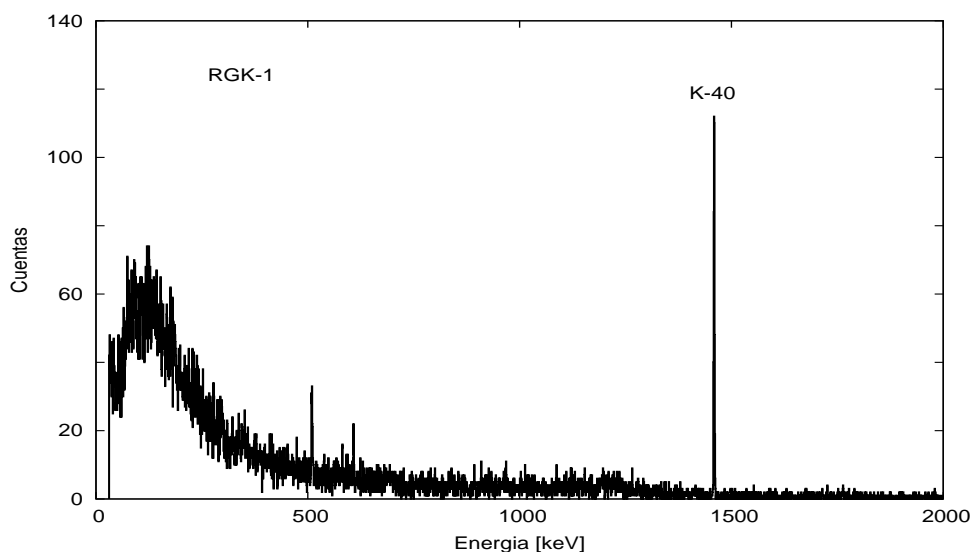


Figura 3.4: Espectro del patrón RGK-1.

Cuadro 3.4: Caracterización del único pico del espectro del patrón RGK-1.

Radionúclido	Energía keV	$\varepsilon(E_\gamma)$ 1×10^{-4}
^{40}K	1460.822(6)	1.55(5)

Cuadro 3.5: Caracterización del patrón RGTh-1. El proceso de normalizar consiste en asignar el valor de 1 al radionúclido con mayor valor de eficiencia (el ^{212}Pb), y por regla de tres normalizar las demás eficiencias tomando como referencia la del radionúclido mencionado.

No. Pico	Radionúclido	Energía keV	$\varepsilon(E_\gamma)$ 1×10^{-4}	$\varepsilon(E_\gamma)$ Normalizada
1	^{212}Pb	238.632(2)	6.9(2)	1.02(2)
2	^{228}Ac	338.4(1)	4.5(1)	0.64(2)
3	^{208}Tl	583.187(2)	3.20(6)	0.46(3)
4	^{212}Bi	727.33(1)	2.4(3)	0.34(4)
5	^{228}Ac	911.2(1)	1.81(6)	0.260(8)
6		969.0(1)	2.1(1)	0.30(1)
7	^{208}Tl	2614.51(1)	1.06(1)	0.153(7)

Cuadro 3.6: Caracterización de los radionúclidos hijos del patrón RGU-1. En este caso se toma como referencia la eficiencia del ^{226}Ra para hacer la normalización.

No. Pico	Radionúclido	Energía keV	$\varepsilon(E_\gamma)$ 1×10^{-4}	$\varepsilon(E_\gamma)$ Normalizada
1	^{226}Ra	186.21(1)	15.6(9)	1.00(6)
2	^{214}Pb	241.997(3)	7.0(5)	0.45(3)
3		295.224(2)	5.9(2)	0.38(1)
4		352.932(2)	4.92(8)	0.32(3)
5		^{214}Bi	609.316(3)	2.93(3)
6	934.06(1)		2.4(4)	0.15(2)
7	1120.29(1)		1.96(8)	0.126(5)
8	1238.11(1)		1.7(2)	0.11(1)
9	1377.67(1)		1.6(3)	0.10(2)
10	1509.22(2)		1.6(5)	0.10(3)
11	1729.64(2)		1.4(4)	0.09(2)
12	1764.54(1)		1.41(7)	0.090(5)

Al observar la Figura 3.4 notamos que el espectro del RGK-1 registra un pico que aparece aproximadamente a 1460 keV de energía, éste se forma por la desintegración β^- del ^{40}K que es el único isótopo radiactivo natural del potasio. A su vez, se evidencia el carácter de padres del ^{232}Th y ^{238}U en los materiales de referencia al registrarse picos provenientes de algunos de sus hijos.

Ahora bien, con los datos de los Cuadros 3.5 y 3.6 representamos en las Figuras 3.5 y 3.6 la eficiencia como función de la energía tanto para la cadena del ^{232}Th como para la del ^{238}U .

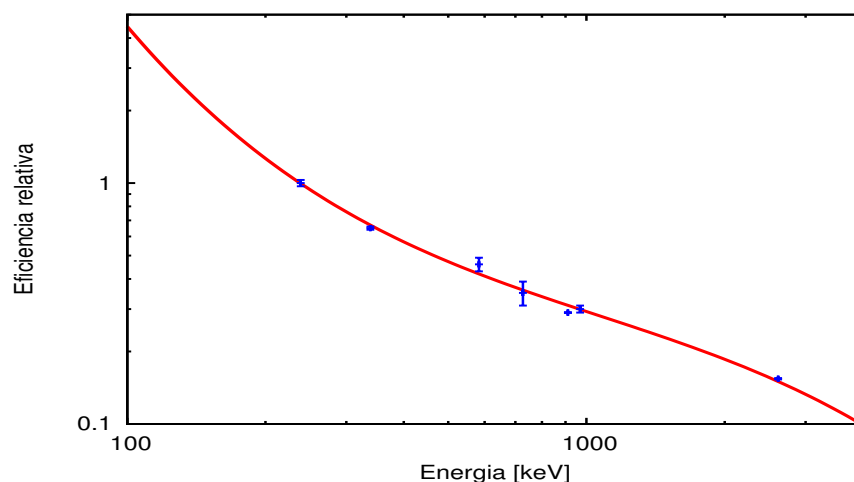


Figura 3.5: Eficiencia de detección en función de la energía para la cadena del ^{232}Th .

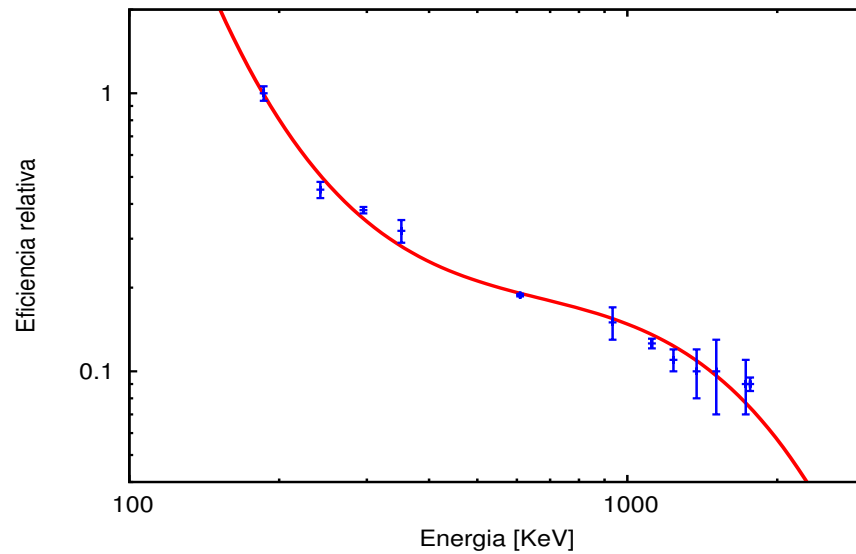


Figura 3.6: Eficiencia de detección en función de la energía para la cadena del ^{238}U .

Los ajustes se hicieron usando una serie logarítmica propuesta en [13], que para la cadena del Torio y Uranio corresponden a:

$$\log[\varepsilon(E_\gamma)] = -1.23(6) - 0.6(1) \log\left(\frac{E_\gamma}{1000}\right) + 0.02(1) \log\left(\frac{E_\gamma}{1000}\right)^2 - 0.09(9) \log\left(\frac{E_\gamma}{1000}\right)^3$$

y

$$\log[\varepsilon(E_\gamma)'] = -1.91(9) - 0.7(2) \log\left(\frac{E_\gamma}{1000}\right) + 0.6(3) \log\left(\frac{E_\gamma}{1000}\right)^2 - 0.5(1) \log\left(\frac{E_\gamma}{1000}\right)^3$$

respectivamente.

De esta manera, conociendo la energía de emisión E_γ del radionúclido y sustituyéndola en alguna de las ecuaciones anteriores, según la cadena que corresponda, podemos calcular aproximadamente la eficiencia de detección.

3.3. Análisis de las muestras

Un análisis correcto de la radiactividad de las muestras demanda que se analice previamente la *radiación de fondo*. Dicha radiación se debe principalmente al Potasio, Uranio y Torio presente en los materiales de construcción del edificio, a las fuentes artificiales presentes en el laboratorio e inclusive a la presencia de estos radionúclidos en el detector y blindaje. El espectro de radiación de fondo fue tomado dejando solo el detector dentro del blindaje de Pb, en la Figura 3.7 se muestran dos secciones del espectro en las que se registraron dos picos de radionúclidos naturales, y en el Cuadro 3.7 los datos correspondientes a las caracterizaciones.

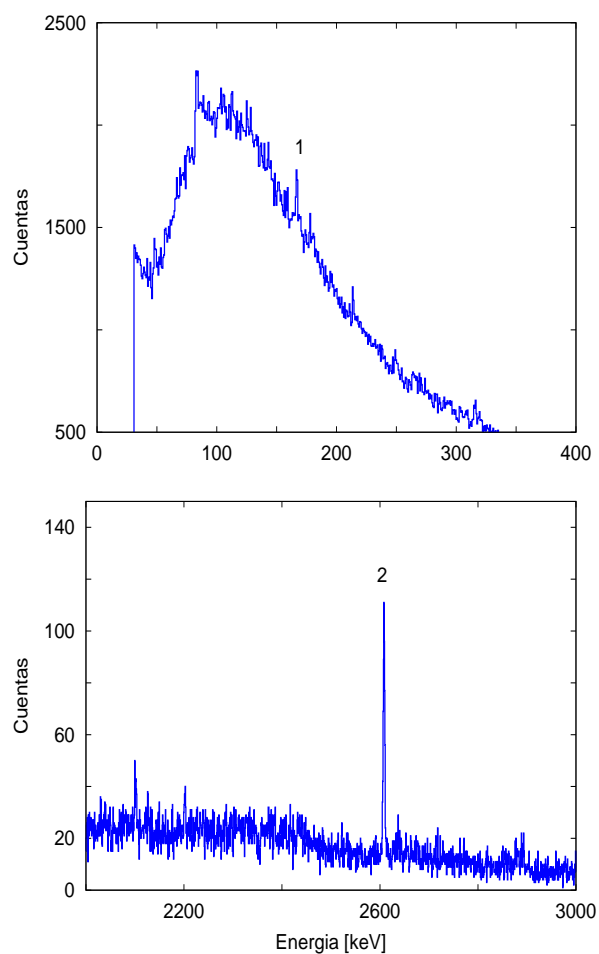


Figura 3.7: Secciones del espectro de la radiación de fondo en las cuales se identificaron dos radionúclidos naturales.

Cuadro 3.7: Radionúclidos de las cadenas naturales detectados en el espectro de fondo, las intensidades obtenidas se calcularon teniendo en cuenta los dos días de medición.

No. de Pico	Radionúclido	Cadena radiactiva	Energía keV	Intensidad
1	^{226}Ra	^{238}U	186.21(1)	344(120)
2	^{208}Tl	^{232}Th	2614.51(1)	291(50)

A este punto del análisis ya podemos pasar a calcular las concentraciones elementales de ^{232}Th , ^{238}U y ^{40}K puesto que el detector está calibrado y el tiempo de espera para alcanzar el equilibrio secular en las muestras se ha cumplido.

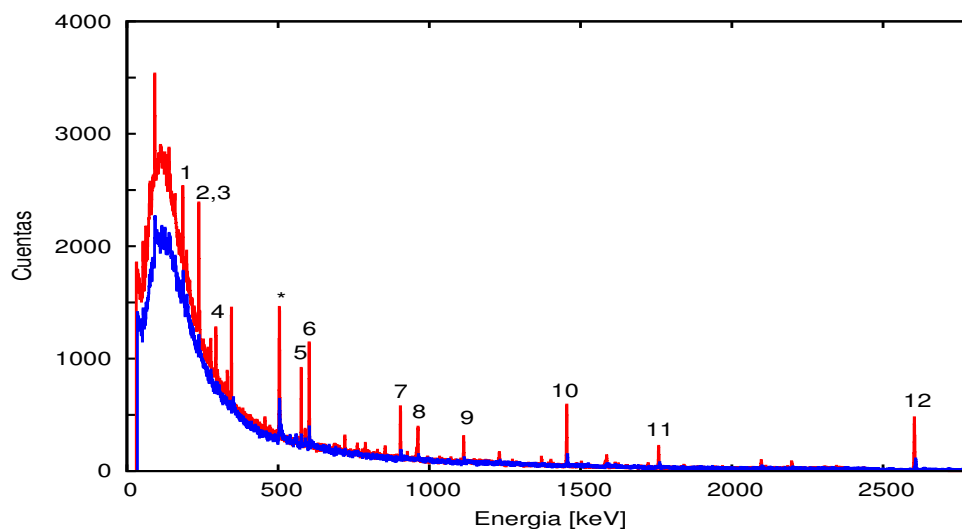
Muestra de Nemocón

Figura 3.8: Espectro de la muestra de Nemocón tomado durante dos días, se observa en azul el espectro de fondo.

Cuadro 3.8: Análisis del espectro de la muestra de Nemocón. Las energías se tomaron de [6], las intensidades y actividades se calcularon usando las ecuaciones 2.6 y 2.8, sin embargo, las intensidades del pico 1 y 12 corresponden a los valores obtenidos al restar las intensidades del ^{226}Ra y ^{208}Tl según el Cuadro 3.7. El pico señalado con el asterisco es generado por el mecanismo de aniquilación positrónica.

No. de Pico	Radionúclido	Cadena radiactiva	Energía keV	Intensidad	Actividad (\bar{A}) Bq kg ⁻¹
1	^{226}Ra	^{238}U	186.21(1)	1831(500)	450(100)
2	^{212}Pb	^{232}Th	238.632(2)	2736(110)	123(6)
3	^{214}Pb	^{238}U	241.997(3)	684(90)	184(30)
4	^{214}Pb	^{238}U	295.224(2)	1040(100)	130(10)
5	^{208}Tl	^{232}Th	583.187(2)	1761(60)	243(10)
6	^{214}Bi	^{238}U	609.316(3)	2653(60)	130(10)
7	^{228}Ac	^{232}Th	911.2(1)	1490(60)	384(20)
8	^{228}Ac	^{232}Th	969.1(1)	988(50)	366(25)
9	^{214}Bi	^{238}U	1120.29(1)	755(50)	352(30)
10	^{40}K	-	1460.822(6)	1976(70)	1610(80)
11	^{214}Bi	^{238}U	1764.54(1)	776(30)	490(30)
12	^{208}Tl	^{232}Th	2614.51(1)	2006(100)	640(20)

Muestra de Bogotá - UNAL

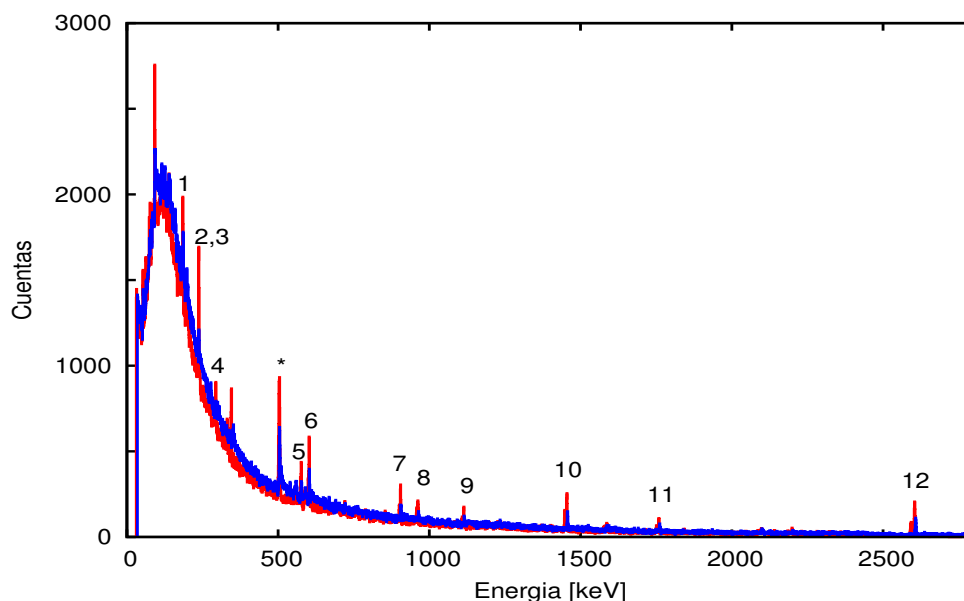


Figura 3.9: Espectro de la muestra de la UNAL en Bogotá tomado durante dos días, se observa en azul el espectro de fondo.

Cuadro 3.9: Análisis del espectro de la muestra de Bogotá - UNAL. Los comentarios hechos en el cuadro anterior también se pueden usar en esta ocasión.

No. de Pico	Radionúclido	Cadena radiactiva	Energía keV	Intensidad	Actividad (\bar{A}) Bq kg ⁻¹
1	²²⁶ Ra	²³⁸ U	186.21(1)	1221(300)	380(90)
2	²¹² Pb	²³² Th	238.632(2)	2072(200)	118(10)
3	²¹⁴ Pb	²³⁸ U	241.997(3)	532(230)	181(80)
4	²¹⁴ Pb	²³⁸ U	295.224(2)	749(140)	119(20)
5	²⁰⁸ Tl	²³² Th	583.187(2)	536(80)	94(10)
6	²¹⁴ Bi	²³⁸ U	609.316(3)	1929(120)	250(10)
7	²²⁸ Ac	²³² Th	911.2(1)	667(50)	218(20)
8	²²⁸ Ac	²³² Th	969.1(1)	436(40)	204(20)
9	²¹⁴ Bi	²³⁸ U	1120.29(1)	335(40)	198(20)
10	⁴⁰ K	-	1460.822(6)	1375(80)	1423(100)
11	²¹⁴ Bi	²³⁸ U	1764.54(1)	503(60)	403(50)
12	²⁰⁸ Tl	²³² Th	2614.51(1)	1146(90)	518(20)

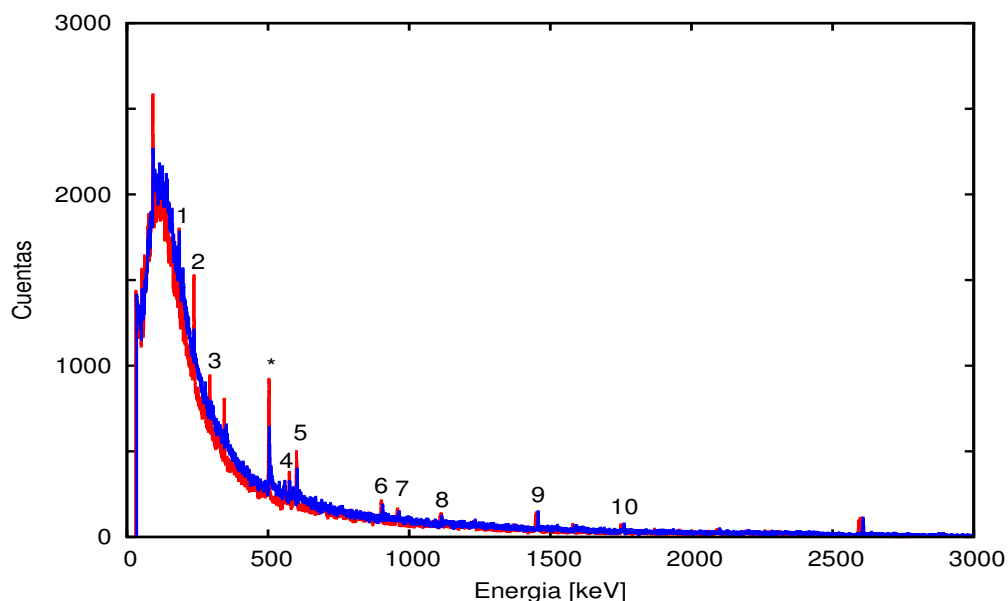
Muestra de Pamplona

Figura 3.10: Espectro de la muestra de Pamplona tomado durante dos días. A diferencia de los anteriores espectros no se observó el pico del ^{214}Pb que aparece a 241 keV.

Cuadro 3.10: Análisis del espectro de la muestra de Pamplona. En esta ocasión no se tiene en cuenta el radionúclido ^{208}Tl que aparece a 2614 keV ya que está completamente solapado por el pico del mismo radionúclido en el espectro de fondo, además se registra nuevamente el pico de aniquilación positrónica.

No. de Pico	Radionúclido	Cadena radiactiva	Energía keV	Intensidad	Actividad (\bar{A}) Bq kg ⁻¹
1	^{226}Ra	^{238}U	186.21(1)	1838(160)	183(130)
2	^{212}Pb	^{232}Th	238.632(2)	2343(140)	127(10)
3	^{214}Pb	^{238}U	295.224(2)	749(160)	120(20)
4	^{208}Tl	^{232}Th	583.187(2)	1136(70)	190(10)
5	^{214}Bi	^{238}U	609.316(3)	2008(80)	248(10)
6	^{228}Ac	^{232}Th	911.2(1)	1057(80)	329(30)
7	^{228}Ac	^{232}Th	969.1(1)	805(80)	360(40)
8	^{214}Bi	^{238}U	1120.29(1)	526(70)	296(40)
9	^{40}K	-	1460.822(6)	1249(100)	344(40)
10	^{214}Bi	^{238}U	1764.54(1)	587(80)	447(60)

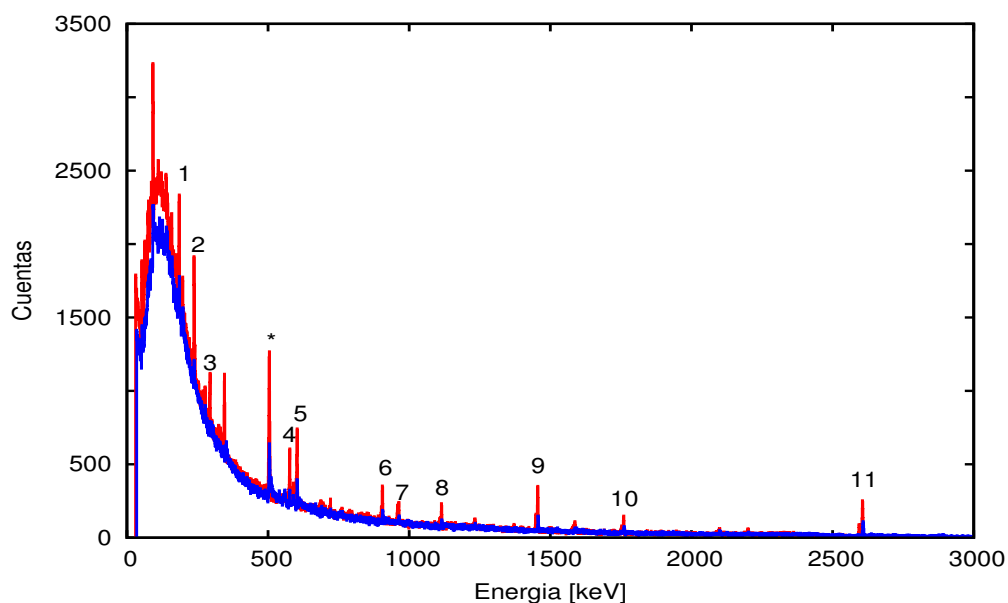
Muestra de Cúcuta

Figura 3.11: Espectro de la muestra de Cúcuta tomado durante dos días. Nuevamente aparece el pico de aniquilación de 511 keV.

Cuadro 3.11: Análisis del espectro de la muestra de Cúcuta. Volvemos a reportar los resultados del pico 11 correspondiente al ^{208}Tl , ya que la intensidad obtenida es mayor que la incertidumbre de la intensidad del mismo pico en el espectro fondo.

No. de Pico	Radionúclido	Cadena radiactiva	Energía keV	Intensidad	Actividad (\bar{A}) Bq kg $^{-1}$
1	^{226}Ra	^{238}U	186.21(1)	1641(290)	399(70)
2	^{212}Pb	^{232}Th	238.632(2)	2477(100)	110(5)
3	^{214}Pb	^{238}U	295.224(2)	1219(120)	151(20)
4	^{208}Tl	^{232}Th	583.187(2)	620(90)	85(10)
5	^{214}Bi	^{238}U	609.316(3)	2302(130)	233(10)
6	^{228}Ac	^{232}Th	911.2(1)	1055(80)	269(20)
7	^{228}Ac	^{232}Th	969.1(1)	600(80)	219(30)
8	^{214}Bi	^{238}U	1120.29(1)	516(50)	238(20)
9	^{40}K	-	1460.822(6)	1258(70)	1016(60)
10	^{214}Bi	^{238}U	1764.54(1)	466(30)	291(20)
11	^{208}Tl	^{232}Th	2614.51(1)	783(110)	276(40)

Muestra de San Andrés Islas

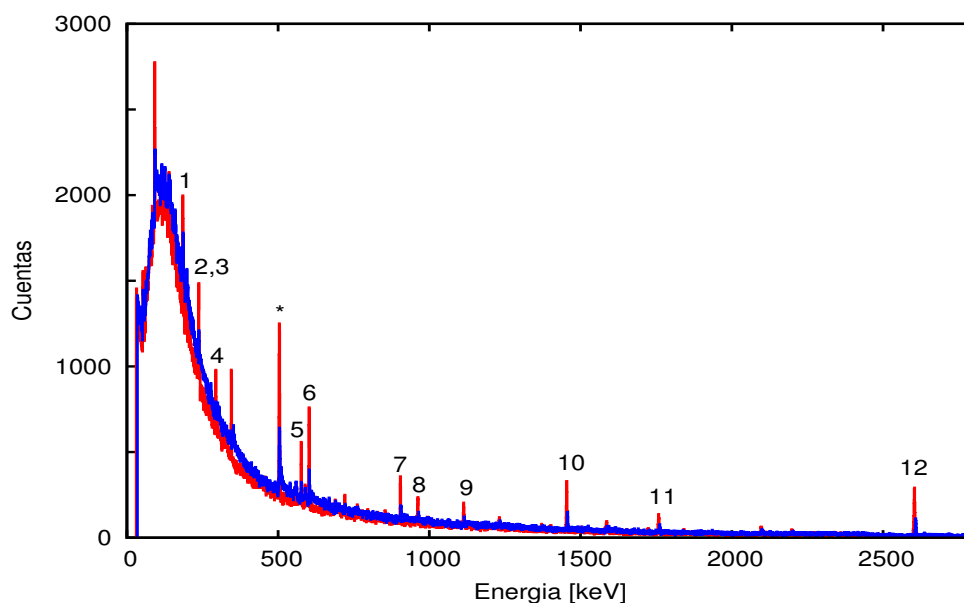


Figura 3.12: Espectro de la muestra de San Andrés Islas tomado durante dos días. En azul se observa el espectro de fondo.

Cuadro 3.12: Análisis del espectro de la muestra de San Andrés Islas.

No. de Pico	Radionúclido	Cadena radiactiva	Energía keV	Intensidad	Actividad (\bar{A}) Bq kg ⁻¹
1	²²⁶ Ra	²³⁸ U	186.21(1)	1299(230)	194(40)
2	²¹² Pb	²³² Th	238.632(2)	1408(150)	38(4)
3	²¹⁴ Pb	²³⁸ U	241.997(3)	427(180)	70(30)
4	²¹⁴ Pb	²³⁸ U	295.224(2)	756(110)	58(10)
5	²⁰⁸ Tl	²³² Th	583.187(2)	921(70)	78(10)
6	²¹⁴ Bi	²³⁸ U	609.316(3)	1837(50)	114(3)
7	²²⁸ Ac	²³² Th	911.2(1)	876(50)	137(10)
8	²²⁸ Ac	²³² Th	969.0(1)	160(10)	36(3)
9	²¹⁴ Bi	²³⁸ U	1120.29(1)	537(40)	152(10)
10	⁴⁰ K	-	1460.822(6)	1183(40)	586(30)
11	²¹⁴ Bi	²³⁸ U	1764.54(1)	511(40)	196(20)
12	²⁰⁸ Tl	²³² Th	2614.51(1)	1121(50)	242(10)

Actividades y concentraciones elementales

A continuación presentamos un compilado de las actividades específicas y concentraciones de los padres ^{232}Th , ^{238}U y ^{40}K de cada una de las muestras, las cuales se calcularon teniendo en cuenta lo mencionado en la sección 2.6.

Cuadro 3.13: Actividades específicas en Bq kg^{-1} de la colección de muestras.

Muestra	Torio ^{232}Th	Uranio ^{238}U	Potasio ^{40}K
Nemocón	351(8)	313(20)	1610(80)
Pamplona	251(10)	259(30)	1231(100)
Bogotá-UNAL	230(10)	255(20)	1423(100)
Cúcuta	192(10)	256(10)	1016(60)
San Andrés	106(4)	131(10)	586(30)

Cuadro 3.14: Concentraciones elementales de la colección de muestras.

Muestra	Torio ^{232}Th en ppm	Uranio ^{238}U en ppm	Potasio ^{40}K en %
Nemocón	86(2)	25(1)	5.1(3)
Pamplona	62(2)	21(2)	3.9(3)
Bogotá-UNAL	57(3)	21(1)	4.5(3)
Cúcuta	47(2)	21(1)	3.2(2)
San Andrés	26(1)	11(1)	1.85(9)

Podemos dar una explicación sencilla acerca de las diferencias en las concentraciones adentrándonos un poco en la geología de las zonas. Al revisar los datos del Cuadro 3.14 notamos que la muestra de San Andrés posee las menores concentraciones, esto se debe a que la muestra corresponde a arena de playa cuyo componente principal es SiO_2 , y además en este sistema costero no se dan procesos geológicos que inyecten radionúclidos en los minerales como si ocurren por ejemplo, en Islas Volcánicas. Ahora bien, si repasamos la Figura 2.12 nos damos cuenta que las demás muestras caen en la Región Andina, y que sus valores de radiactividad son mayores comparados con los del Archipiélago debido a que los suelos de esta región están conformados por diferentes tipos de rocas, que al experimentar procesos geológicos permiten que los materiales radiactivos se distribuyan en los diferentes perfiles del suelo [14].

Análisis comparativo

Con el fin de dar una idea de las concentraciones calculadas, comparamos nuestros resultados con los reportados por otros autores citados en la bibliografía.

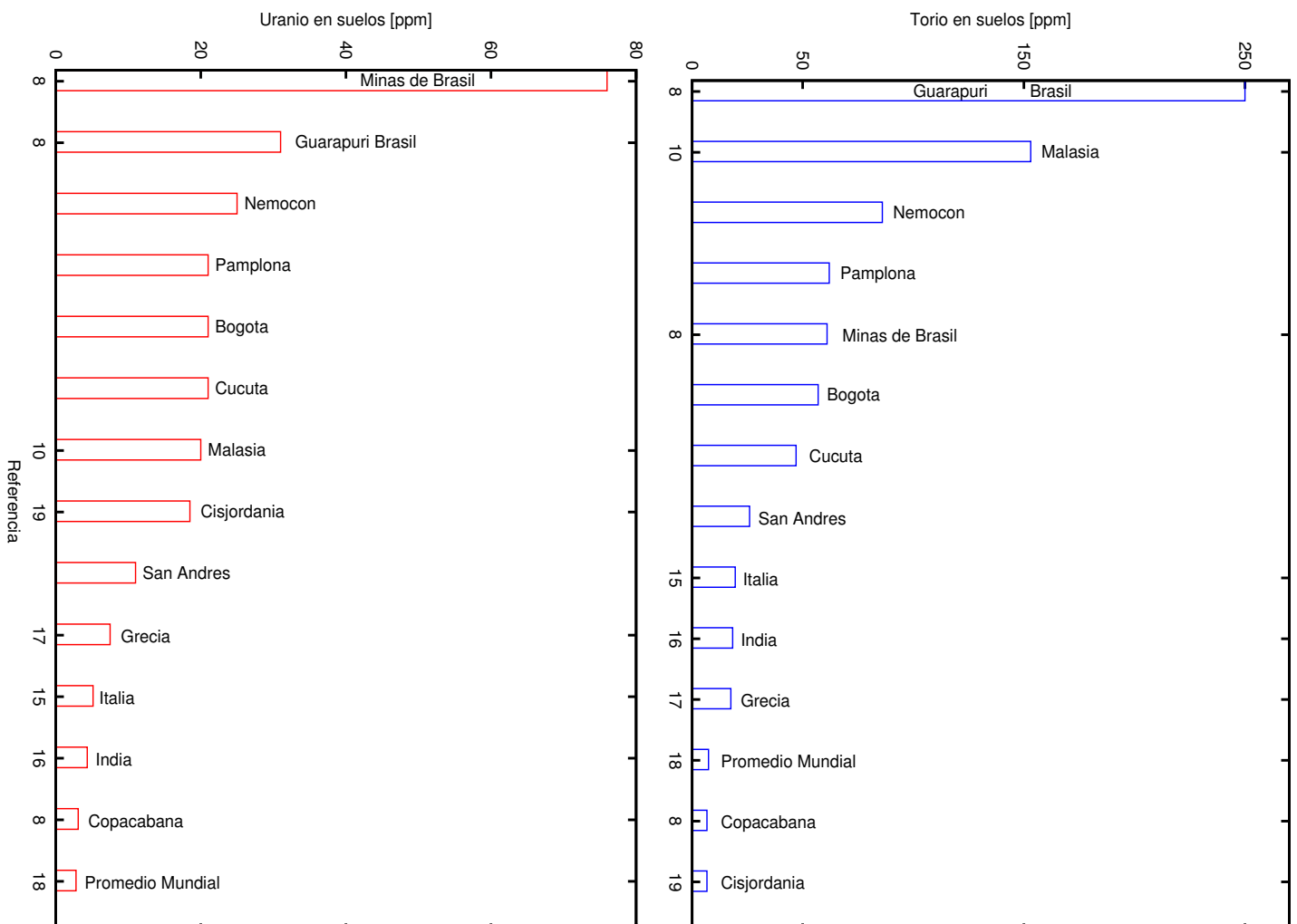


Figura 3.13: Concentración de ^{232}Th y ^{238}U en diferentes partes del Mundo.

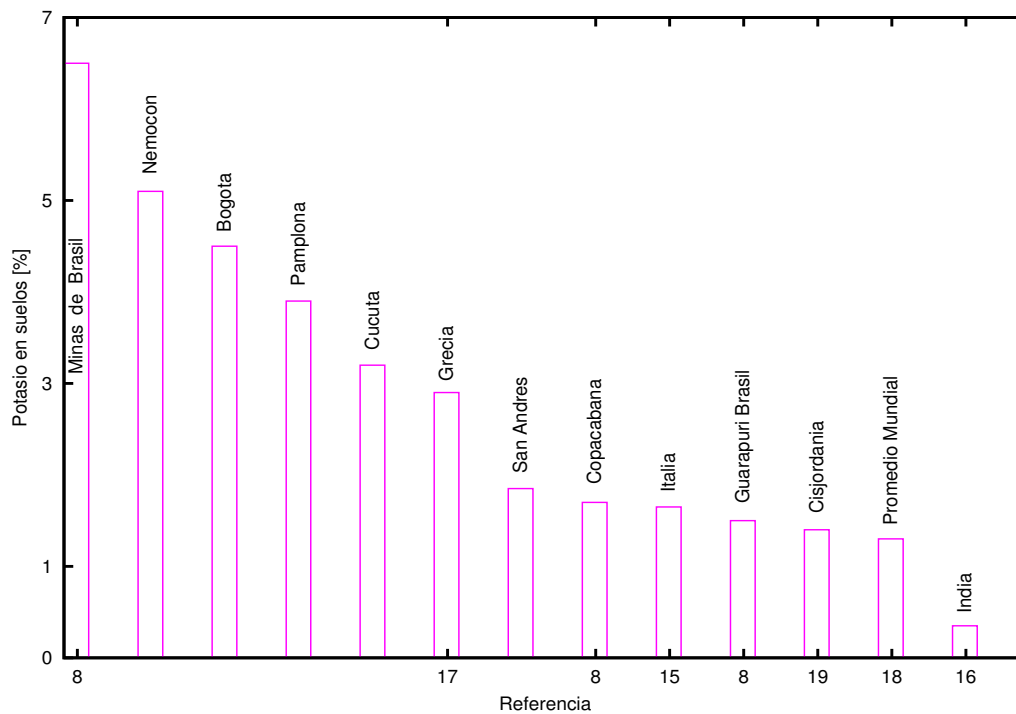


Figura 3.14: Concentración de ^{40}K en diferentes partes del Mundo.

De estas comparaciones podemos destacar lo siguiente:

1. Los resultados citados corresponden a valores promedio de concentración que representan una zona de estudio.
2. Las concentraciones calculadas fueron comparadas con regiones que poseen tanto niveles altos como bajos de radiactividad. Por ejemplo, se presentan elevadas concentraciones en suelos aledaños a las minas Poços de Caldas en Brasil debido a los desechos radiactivos que suspenden en ellos. Mientras que en suelos de las Playas de Copacabana (también en Brasil) hay bajos niveles de radiactividad, tal como ocurre con la muestra analizada de San Andrés.
3. También podemos notar que nuestras concentraciones se encuentran por encima del promedio mundial de radiactividad terrestre reportado por [18], sin embargo, a continuación evaluamos los riesgos radiológicos que esto representa.

Evaluaciones de las dosis

Finalmente presentamos una evaluación de las magnitudes dosimétricas comentadas en la sección 2.7. En el Cuadro 3.15 se muestran los resultados obtenidos, donde las tasas de dosis absorbida y efectiva se obtuvieron usando las ecuaciones 2.13 y 2.14 respectivamente.

Cuadro 3.15: Datos de las tasas de dosis absorbidas y efectivas generadas por los rayos γ . El promedio mundial fue tomado de [18].

Muestra	Tasas de dosis absorbida nGy h ⁻¹	Tasas de dosis efectiva mSv a ⁻¹
Nemocón	424(10)	0.52(1)
Promedio Mundial	407	0.5
Pamplona	323(20)	0.39(2)
Bogotá-UNAL	316(10)	0.39(1)
Cúcuta	277(10)	0.34(1)
San Andrés	149(5)	0.183(6)

En la Figura 3.15 comparamos nuestros resultados con regiones que poseen altos y bajos índices de dosis efectiva anual y notamos que se asemejan al promedio mundial, de tal manera que se ubican en el intervalo típico de radiación γ terrestre que va de 0.3 a 0.6 mSv a⁻¹.

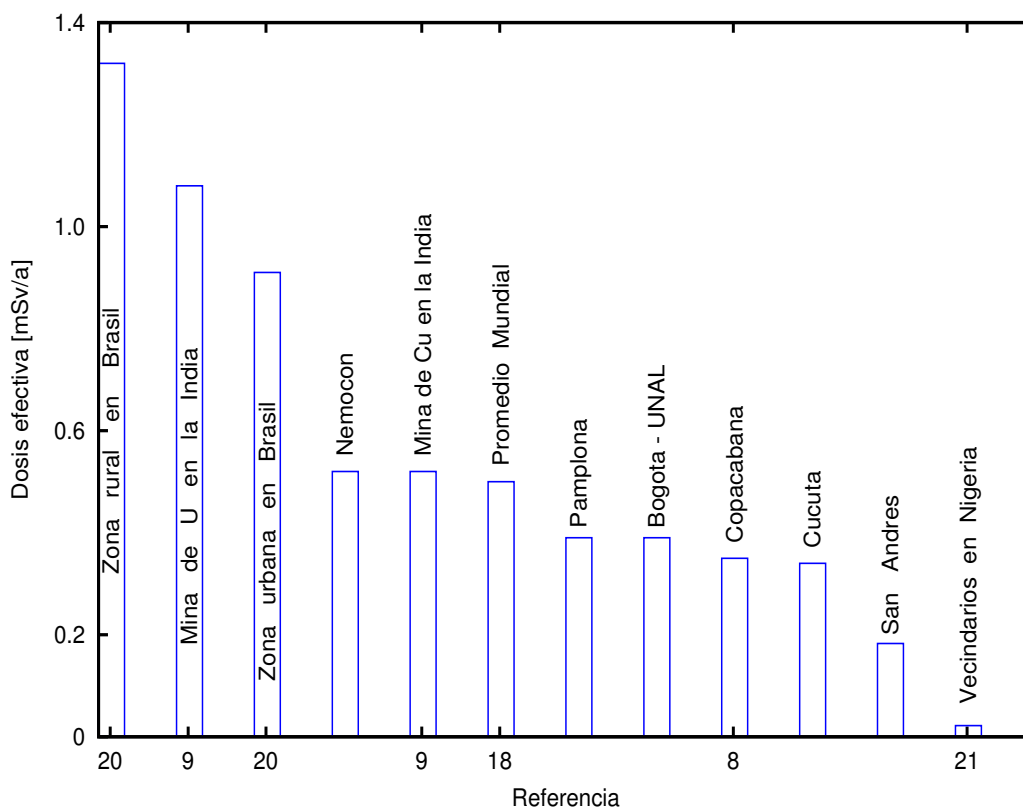


Figura 3.15: Dosis efectiva debida a los rayos γ en diferentes partes del Mundo.

En la Figura 3.16 se observan las diferentes fuentes de radiación que contribuyen con la exposición anual promedio recibida por los seres humanos, donde podemos notar que la principal dosis se debe a la exposición por la desintegración del ^{222}Rn con un valor de 1.6 mSv a^{-1} , estimando que esta dosis efectiva anual causa del 5 al 10 % de los casos de cáncer de pulmón en la población Mundial.

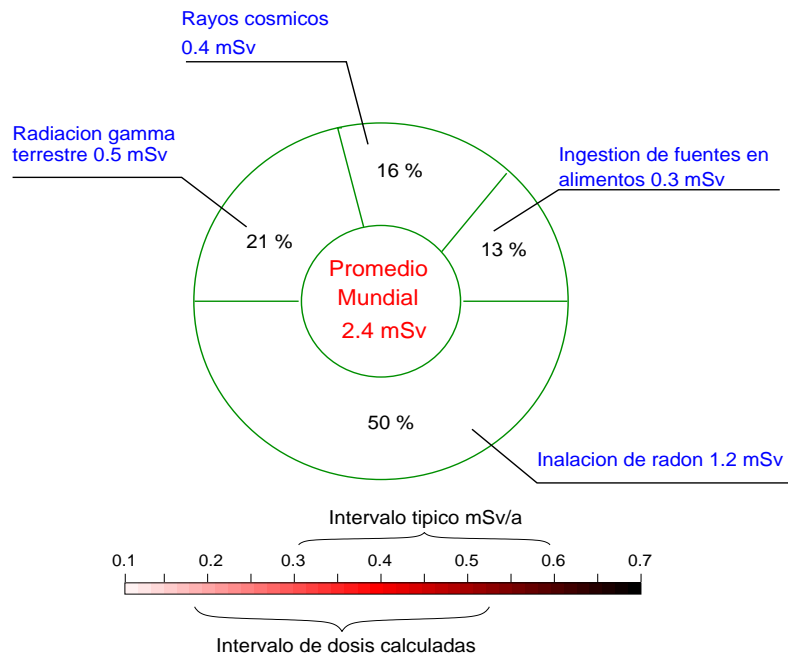


Figura 3.16: Fuentes de radiación y dosis efectiva anual en el Mundo. Se observa que el intervalo de dosis efectiva debida a las muestras de suelo se encuentra por debajo del intervalo típico Mundial de dosis efectiva anual.

Tomando el mayor valor de dosis efectiva calculada en este trabajo, correspondiente a la muestra de Nemocón con $0.52(1) \text{ mSv a}^{-1}$, encontramos que es aproximadamente igual al promedio mundial de dosis efectiva anual y por consiguiente podemos decir que las dosis efectivas calculadas no representan riesgo radiológico alguno, además debemos tener en cuenta que el riesgo de adquirir cualquier tipo de cáncer se incrementa considerablemente cuando se reciben dosis por encima de los 100 mSv a^{-1} [18].

Vale la pena aclarar que las dosis calculadas las usamos como datos de referencia mas no son útiles para decidir un diagnóstico general sobre una población, ya que nuestras muestras no representan apropiadamente un terreno habitado.

3.4. Conclusiones

1. Se logró el objetivo principal de este trabajo que consistió en medir las concentraciones de ^{232}Th , ^{238}U y ^{40}K en cinco muestras de suelo por medio del sistema de espectroscopía de rayos γ de alta resolución.

2. El análisis de los espectros de los patrones tomados tanto con el detector de NaI como el HPGe revela la capacidad de este último para registrar múltiples picos de energías similares que el detector de NaI no puede resolver.
3. A través de la comparación de los ajustes de picos en espectros medidos durante 24 y 48 h podemos concluir que estos últimos resultaron óptimos, ya que se registraron el suficiente número de cuentas que duplicaron la amplitud de los picos permitiendo obtener ajustes a funciones gaussianas más precisos.
4. Se calibró el detector HPGe en energía y eficiencia, lo que nos permite decir que la fuente mixta de Eu y los materiales de referencia RTh-1, RGU-1 y RGK-1 son patrones de calibración adecuados para conocer la relación Canal - Energía y la eficiencia de detección del HPGe.
5. Los ajustes en eficiencia realizados usando los materiales otorgados por la I.A.E.A. se pueden utilizar en muestras de suelo siempre y cuando conserven al máximo tanto su apariencia física con los materiales de referencia, como la distancia al detector empleada para la toma de los espectros.
6. Se identificó en el espectro de la radiación de fondo los radionúclidos ^{226}Ra quien es uno de los miembros principales de la cadena del *Uranio* y el ^{208}Tl perteneciente a la cadena del *Torio*.
6. Los radionúclidos identificados en las muestras correspondientes a la cadena del *Uranio* son el ^{214}Pb , ^{214}Bi y el ^{226}Ra , y por parte de la cadena del *Torio* se identificaron el ^{212}Pb , ^{208}Tl y ^{228}Ac .
7. Teniendo en cuenta las concentraciones calculadas de ^{40}K se comprueba su mayor abundancia con respecto al ^{238}U y ^{232}Th al requerirse reportar las concentraciones en % y no en ppm como se hizo con los padres de las cadenas.
8. Con respecto al Rn, aunque se hayan identificado tanto sus hijos ^{214}Pb , ^{214}Bi y ^{212}Pb como su padre el ^{226}Ra , no se detectaron ninguno de los isótopos radiactivos del Rn en las muestras. Concluimos que esto puede deberse a las elevadas temperaturas que experimentan las muestras en el horno favoreciendo la desorción del gas [24].
9. El tiempo de espera de seis semanas con el fin de alcanzar la condición de equilibrio secular luego de secar las muestras en el horno resulto apropiado, puesto que se alcanzaron a generar los productos de decaimiento del Rn: ^{214}Pb , ^{214}Bi y ^{212}Pb que son algunos de los principales emisores de rayos γ de las cadenas radiactivas.
10. Las concentraciones medidas de ^{232}Th , ^{238}U y ^{40}K están entre 26 y 86 ppm, 11 y 25 ppm, 1.9 y 5.1 % respectivamente, de tal manera que se encuentran comprendidas en el intermedio de zonas que poseen altos y bajos niveles de radiación natural como lo son las Minas de Poços de Caldas en Brasil y algunas zonas residenciales en la India. Por otro lado las tasas de dosis efectiva calculadas se ubican entre 0.3

y 0.6 mSv a^{-1} concluyendo que se encuentran en un intervalo típico de dosis por radiación γ terrestre, lo cual implica que no representan riesgo biológico alguno para los tejidos y órganos del cuerpo.

3.5. Recomendaciones

1. Para próximas investigaciones recomendamos destinar muestras de suelo en las que se omita la etapa de secado en el horno con el fin de detectar Rn en los espectros, de tal manera que se haga una evaluación directa del impacto radiológico que tendría la concentración del gas en los alveolos pulmonares.
2. Llevar a cabo un estudio comparativo de las concentraciones de ^{232}Th , ^{238}U y ^{40}K en suelos realizados con el detector de NaI y el HPGe.
3. Puesto que las muestras tomadas no representan apropiadamente un terreno objeto de estudio, recomendamos que se hagan muestreos intensivos de tal manera que la concentración reportada represente un promedio de la concentración del terreno estudiado y si es el caso, que las dosis calculadas permitan hacer un diagnóstico sobre una población en general.
4. Igualmente recomendamos llevar a cabo estas mediciones en zonas donde por las características geológicas del terreno se sospeche la presencia de material radiactivo, tal como ocurre en Zapatoca y California (Santander) y Paipa (Boyacá) [4].

Presentación de resultados

Los resultados experimentales carecen de interés si no van seguidos de una estimación de los errores involucrados en su medida. En los análisis radiométricos es frecuente citar el valor promedio como la cantidad medida y la desviación estándar como la estimación de su precisión. Como primera medida en la presentación de resultados es necesario hacer el redondeo de la respuesta, y para ello el principio es que *el número de cifras significativas dadas indican la precisión del experimento*. En la práctica se incluyen como cifras significativas todos los dígitos seguros, más el primer incierto. Por ejemplo:

El valor promedio de las densidades (ver Cuadro 4.1) 0.838, 1.377, 1.012, 1.451 y 1.390 es 1.2136 g cm^{-3} , y su desviación estándar es $0.27180 \text{ g cm}^{-3}$ indicando que la incertidumbre la determina la primera cifra decimal, de tal manera que el resultado podemos expresarlo como:

$$\bar{x} \pm s = 1.2 \pm 0.3 \text{ g cm}^{-3}, \quad (\text{A.1})$$

Sin embargo, en este trabajo la incertidumbre la indicamos entre paréntesis, así el resultado de A.1 lo expresamos como 1.2(3).

A.1. Propagación de errores aleatorios

Con frecuencia en el trabajo experimental la cantidad que se va a determinar se calcula a partir de operaciones tales como sumas, restas, multiplicaciones o divisiones de dos o más cantidades observables que llevan consigo su propia incertidumbre. Si conocemos la incertidumbre de cada observación podemos usar métodos matemáticos sencillos para estimar la precisión del resultado final. Puesto que los métodos para combinar errores aleatorios y sistemáticos difieren, en esta sección consideramos *los errores aleatorios*, los cuales provocan que los resultados individuales de un experimento difieran uno de

otro de manera que caigan a ambos lados de un valor medio, afectando la precisión de un experimento. Los métodos matemáticos que permiten combinar errores aleatorios son:

A.1.1. Combinaciones lineales

Cuando el valor final, y , está dado por una combinación lineal de cantidades medidas a , b , c y n , como:

$$y = k + k_a a + k_b b + k_c c + \dots + k_n n, \quad (\text{A.2})$$

donde k , k_a , k_b , k_c y k_n son constantes. Si las desviaciones estándar de las medidas son σ_a , σ_b , σ_c y σ_n se puede calcular la desviación estándar σ_y de y , usando:

$$\sigma_y = \sqrt{(k_a \sigma_a)^2 + (k_b \sigma_b)^2 + (k_c \sigma_c)^2 + \dots + (k_n \sigma_n)^2}$$

A.1.2. Expresiones multiplicativas

Cuando el valor final y se calcula a partir de una expresión como:

$$y = k \frac{ab}{cd} \quad (\text{A.3})$$

donde a , b , c y d son cantidades medidas independientes con sus respectivas incertidumbres y k es una constante. La desviación estándar de y se obtiene usando la siguiente expresión que relaciona los cuadrados de los errores de las medidas:

$$\frac{\sigma_y}{y} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_a}{a}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_b}{b}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_c}{c}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_d}{d}\right)^2}$$

A.1.3. Otras funciones

Si y es una función de x , $y = f(x)$, las desviaciones estándar de y y x se relacionan por:

$$\sigma_y = \left| \sigma_x \frac{dy}{dx} \right| \quad (\text{A.4})$$

A.2. Propagación de errores sistemáticos

Por otro lado, los errores sistemáticos provocan que todos los resultados sean erróneos en el mismo sentido, estos hacen que el valor medio de un conjunto de medidas repetidas se desvíen del valor verdadero, y de ellos se deduce que:

- a) Los errores sistemáticos no se pueden apreciar con la mera repetición de mediciones.

- b) Se puede juzgar la magnitud del error sistemático al compararlo con el error de referencia del análisis, que por lo general no se conoce.

Los métodos matemáticos que permiten propagar adecuadamente los errores sistemáticos son:

A.2.1. Combinaciones lineales

Si y se calcula usando la expresión A.2, y los errores sistemáticos de a , b , c y n son Δa , Δb , Δc y Δn , el error sistemático Δy de y se define como:

$$\Delta y = k_a \Delta a + k_b \Delta b + k_c \Delta c + \dots + k_n \Delta n.$$

Vale la pena mencionar que los errores sistemáticos pueden ser tanto negativos como positivos, por tal razón es necesario incluir el signo en el cálculo de Δy .

A.2.2. Expresiones multiplicativas

Cuando y se calcula mediante una expresión como la A.3 se usa:

$$\frac{\Delta y}{y} = \frac{\Delta a}{a} + \frac{\Delta b}{b} + \frac{\Delta c}{c} + \frac{\Delta d}{d},$$

Donde Δa , Δb , Δc y Δd son los errores sistemáticos de las cantidades medidas a , b , c , y d respectivamente.

A.2.3. Otras funciones

La expresión utilizada en la propagación de errores sistemáticos en funciones del tipo $y = f(x)$ es la A.4, con la diferencia que se omite el signo del módulo y las desviaciones estándar se sustituyen por errores sistemáticos.

Los fundamentos de propagación de errores presentados en este apéndice fueron tomados de la referencia [23]

Divulgación del trabajo

Teniendo en cuenta los resultados obtenidos en este trabajo se diseñó un póster y se presentó en el **XII Workshop on Nuclear Physics** que se celebró en Febrero del presente año en la Habana Cuba. A continuación el resumen enviado para lograr la participación en el evento:

Measurements of ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K in soils of different regions of Colombia

E. F. Mendoza, M. L. Cortes and F. Cristancho

The natural radionuclides ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K are the most important gamma ray emitters present in the earth crust and its concentration depends mainly on the processes of mineralization and geological formation that occur in nature. The determination of such concentrations is important because it allow us to know the radiation exposure to human beings in different regions and thus watch the dose levels received by the population. Taking into account the wide variety of geographical reliefs in Colombia, we took a collection of samples both from sand beaches and high mountains systems and determined its concentration of ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K using a high resolution gamma spectrometry system. The results of such measurements show a variation of these concentration for the different samples that we associate with the geological formations, the soil type and the environmental conditions of the chosen regions. We also compare our results with other studies made in regions with similar geological conditions.

Keywords: Radioactivity natural, soils, gamma ray, detector HPGe.

Bibliografía

- [1] Tanarro, A., Onrubia, A. Diccionario inglés - español sobre Tecnología Nuclear. Foro nuclear, foro de la industria nuclear Española.
- [2] Loveland, W., Morrissey, D., Seaborg, G., 2006. Modern nuclear chemistry. Published by John Wiley & Sons, Inc. New Jersey.
- [3] Bateman, H., 1910. The Solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations. Prod. Cambridge Phil. Society.
- [4] Duque, O., Gomez, G., 1988. Análisis radiométrico y su aplicación en los estudios de desequilibrio radiactivo de algunos minerales uraníferos en Colombia. Instituto de Asuntos Nucleares I.A.N., Área de Química.
- [5] Theodorsson, P., 1996. Measurement of Weak Radioactivity. World Scientific Publishing Co.
- [6] I.A.E.A., 2007. Update of X Ray and Gamma Ray Decay Data Standards for Detector Calibration and Other Applications Volume 1.
- [7] I.A.E.A., 1987. REFERENCE MATERIAL FOR GAMMA-RAY SPECTROMETRY ANALYSIS OF GEOLOGICAL MATERIALS. Report I.A.E.A., Viena.
- [8] Anjos, R., Okuno, E., Gomes, P., et al., 2004. Radioecology teaching: evaluation of the background radiation levels from areas with high concentrations of radionuclides in soil. European Journal of Physics, **25** 133-144.
- [9] Mahur, A., Kumar, R., Sonkawade, W., Sengupta, D., Prasad, R., 2008. Measurement of natural radioactivity and radon exhalation rate from rock samples of Jaduguda uranium mines and its radiological implications. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, **266** 1591-1597.

- [10] Termizi, A., Wahab, A., Khalik, A., 2005. Environmental ^{238}U and ^{232}Th concentration measurements in an area of high level natural background radiation at Palong, Johor, Malaysia. *Journal of Environmental Radioactivity*, **80** 287-304.
- [11] Nada, A., Maksoud, T., Hosnia, M., Nagar, T., Awad, S., 2009. Distribution of radionuclides in soil samples from a petrified wood forest in El-Qattamia, Cairo, Egypt. *Applied Radiation and Isotopes*, **67** 643-649.
- [12] Daniel, J., 2002. *Introducción a la Ciencia del Suelo*. UNAL, Facultad de Ciencias, Medellín.
- [13] Gilmore, G., 2008. *Practical Gamma - ray Spectrometry*. John Wiley & Sons, Inc., Second Edition: 11.
- [14] Tarbuck., Lutgens., 1999. *Ciencias de la Tierra, una introducción a la Geología Física*. Sexta edición. Prentice Hall.
- [15] Bellia, S., Brai, M., Hauser, S., Puccio, P., Rizzo, S., 1997. Natural radioactivity in a volcanic island Ustica, Southern Italy. *Applied Radiation and Isotopes*, **48** 287-293.
- [16] Nageswara, M.V., Bhati, S.S., Rama Seshu, P., Reddy, A.R., 1996. Natural radioactivity in soil and radiation levels of Rajasthan. *Radiation Protection and Dosimetry*, **63** 207-216.
- [17] Florou, H., Kritidis, P., 1992. Gamma radiation measurements and dose rate in the costal areas of a volcanic island, Aegean Sea, Greece. *Radiation Protection and Dosimetry*, **45** 545-548.
- [18] UNSCEAR, 2000. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. Volume II Effects. United Nations Sales Publication, New York.
- [19] Ahmad, N., Matiullah, L., Khataibeh, A.H., 1997. Indoor radon levels and natural radioactivity in Jordanian soil. *Radiation Protection and Dosimetry*, **71** 231-233.
- [20] Lene, H., Koifman, S., Melo, V., Sachet, I., Amaral, E., 2003. Preliminary indoor radon risk assessment at the Pocos de Caldas Plateau, MG - Brazil. *Journal of Environmental Radioactivity*, **70** 161-176.
- [21] Alatise, O., Babalola, I., Olowofela, J., 2008. Distribution of some natural gamma-emitting radionuclides in the soils of the coastal areas of Nigeria. *Journal of Environmental Radioactivity*, **99** 1746-1749. .
- [22] Maringer, F., J., Kaineder, H., Nadschlager, E., Sperker, S., 2008. Standards and experience in radon measurements and regulation of radon mitigation in Austria. *Applied Radiation and Isotopes*, **66** 1644-1649.

- [23] James, N., 2002. Estadística y quimiometría para Química Analítica. Prentice Hall, cuarta Edición.
- [24] Benke, R.R., Kearfott, K.J., 2000. Accounting for ^{222}Rn loss during oven drying for the immediate laboratory gamma-ray spectroscopy of collected soil samples. *Applied Radiation and Isotopes*, **52** 271-287.
- [25] Ramli, A.T., Lee, M.H., Hussein, A.M.A., 2001. Geological influence on terrestrial gamma radiation dose rate in the Malaysian state of Johore. *Applied Radiation and Isotopes*, **54** 327-333.
- [26] Celik, N., Cevik, A., Celik, A., Kucukomeroglu, B., 2008. Determination of indoor radon and soil radioactivity levels in Giresun, Turkey. *Journal of Environmental Radioactivity*, **99** 1349-1354.
- [27] Frenzel, E., 1993. Basics and philosophy of environmental monitoring in Europe. In Proceedings of the 26th midyear topical meeting, Health Physics Society, **19** 24-28.
- [28] Little, M., P., Haylock, R.G.E., Muirhead, C.R., 2001. Modelling lung tumour risk in radon-exposed uranium miners using generalizations of the two-mutation model of Moolgavkar, Venton, and Knudson. *International Journal of Radiation Biology*, **78** 49-68.
- [29] National Research Council, 1988. In: Committee on the biological effects of ionizing radiations. Health risks of radon and other internally deposited alpha - emitters (BEIR IV). National Academy Press, Washington, DC, 602.
- [30] Samet, J.M., 1989. Radon and lung cancer. J. Natl. Cancer Institute.
- [31] Lubin, J.H., Boice Jr., J.D., Edling, C., Hornung, R.W., Howe, G., Kunz, R.A., Morrison, H.I., Radford, E.P., Samet, J.M., Tirmarche, M., Woodward, Y.S., Pierce, D.A., 1994. Radon and lung cancer risk: a joint analysis of 11 underground miners studies. U.S. Department of Health and Human Services, Public Health Service, Institutes of Health, NIH Publication.
- [32] Baeza, A., Del-Rio, M., Miro, C., 1992. Natural radioactivity in soils of the province of Caceres (Spain). *Radiation Protection and Dosimetry*, **45** 261-263.